THÈSE

PRÉSENTÉE

A L'UNIVERSITÉ SCIENTIFIQUE ET MÉDICALE DE GRENOBLE

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE TROISIÈME CYCLE

SPÉCIALITÉ : PHYSIQUE DU SOLIDE

par

CLAUDE FISCHER

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE, PAR MICROSCOPIE ÉLECTRONIQUE, DE L'AGGLOMÉRATION DES LACUNES SOUS FORME DE VIDES : NIOBIUM IRRADIÉ AUX NEUTRONS, TREMPE DU NICKEL.

Soutenue le 24 Janvier 1973, devant la commission d'examen

M. P. DUCROS	PRÉSIDENT
M^ME C. MINIER MM. J. HILLAIRET A. BOURRET	EXAMINATEURS

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41534927_0033

THÈSE

PRÉSENTÉE

A L'UNIVERSITÉ SCIENTIFIQUE ET MÉDICALE DE GRENOBLE

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE TROISIÈME CYCLE

SPÉCIALITÉ : PHYSIQUE DU SOLIDE

par

CLAUDE FISCHER

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE, PAR MICROSCOPIE ÉLECTRONIQUE, DE L'AGGLOMÉRATION DES LACUNES SOUS FORME DE VIDES : NIOBIUM IRRADIÉ AUX NEUTRONS, TREMPE DU NICKEL.

Soutenue le 24 Janvier 1973, devant la commission d'examen

M. P. DUCROS	PRÉSIDENT
M^ME C. MINIER MM. J. HILLAIRET A. BOURRET	EXAMINATEURS

UNIV.
LEIDEN
BIB.

ET MEDICALE DE GRENOBLE

LISTE DES PROFESSEURS

Président : Monsieur Michel SOUTIF
Vice-Président : Monsieur Gabriel CAU

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
	ARNAUD Georges	Clinique des maladies infectieuses
	ARNAUD Paul	Chimie
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BENOIT Jean	Radioélectricité
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures
	BESSON Jean	Electrochimie
	BEZES Henri	Chirurgie générale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Georges	Electrotechnique
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Pathologie médicale
	BONNIER Etienne	Electrochimie Electrométallurgie
	BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques Appliquées
	BRAVARD Yves	Géographie
	BRISSONNEAU Pierre	Physique du Solide
	BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
	CABANAC Jean	Pathologie chirurgicale
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologie
	CALAS François	Anatomie
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et Toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Oto-Rhino-Laryngologie
	CHATEAU Robert	Thérapeutique
	CHENE Marcel	Chimie papetière
	COEUR André	Pharmacie chimique
	CONTAMIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie Pathologique
	CRAYA Antoine	Mécanique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	DUGOIS Pierre	Clinique de Dermatologie et Syphiligraphie
	FAU René	Clinique neuro-psychiatrique
	FELICI Noël	Electrostatique

MM.	GAGNAIRE Didier	Chimie physique
	GALLISSOT François	Mathématiques Pures
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GIRAUD Pierre	Géologie
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
Mme	KOFLER Lucie	Botanique et Physiologie végétale
MM.	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOUP Jean	Géographie
Mle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
	MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Sémélologie médicale
	MASSEPORT Jean	Géographie
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	NEEL Louis	Physique du Solide
	OZENDA Paul	Botanique
	PAUTHENET René	Electrotechnique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET René	Servomécanismes
	PILLET Emile	Physique industrielle
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REULOS René	Physique industrielle
	RINALDI Renaud	Physique
	ROGET Jean	Clinique de pédiatrie et de puériculture
	SANTON Lucien	Mécanique
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SILBERT Robert	Mécanique des fluides
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	VAILLAND François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
M.	VERAIN André	Physique
Mme	VEYRET Germaine	Géographie
MM.	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale
	YOCCOZ Jean	Physique nucléaire théorique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	BULLEMER Bernhard	Physique
	HANO JUN-ICHI	Mathématiques Pures
	STEPHENS Michaël	Mathématiques Appliquées

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM.	BEAUDOING André	Pédiatrie
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
Mme	BONNIER Jane	Chimie générale
MM.	CARLIER Georges	Biologie végétale
	COHEN Joseph	Electrotechnique
	COUMES André	Radioélectricité
	DEPASSEL Roger	Mécanique des Fluides
	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	GAUTHIER Yves	Sciences biologiques
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GERMAIN Jean Pierre	Mécanique
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	JANIN Bernard	Géographie
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	MULLER Jean-Michel	Thérapeutique
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et minéralogie
	POULOUJADOFF Michel	Electrotechnique
	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REVOL Michel	Urologie
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	ROBERT André	Chimie papetière
	DE ROUGEMONT Jacques	Neurochirurgie
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIBILLE Robert	Construction Mécanique
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

Mle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	AMBLARD Pierre	Dermatologie
	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Yves	Chimie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
	BELORIZKY Elie	Physique
	BENZAKEN Claude	Mathématiques Appliquées
	BILLET Jean	Géographie
	BLIMAN Samuel	Electronique (EIE)
	BLOCH Daniel	Electrotechnique
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BOUCHET Yves	Anatomie
	BOUVARD Maurice	Mécanique des Fluides

MM.	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
	BRUGEL Lucien	Energétique
	BUISSON Roger	Physique
	BUTEL Jean	Orthopédie
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie médicale
	CONTE René	Physique
	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	DURAND Francis	Métallurgie
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	GENSAC Pierre	Botanique
	GIDON Maurice	Géologie
	GRIFFITHS Michaël	Mathématiques Appliquées
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventiv
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	IVANES Marcel	Electricité
	JALBERT Pierre	Histologie
	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
	JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide
	JULLIEN Pierre	Mathématiques Pures
	KAHANE André	Physique générale
	KUHN Gérard	Physique
	LACOUME Jean-Louis	Physique
Mme	LAJZEROWICZ Jeanine	Physique
MM.	LANCIA Roland	Physique atomique
	LE JUNTER Noël	Electronique
	LEROY Philippe	Mathématiques
	LOISEAUX Jean-Marie	Physique Nucléaire
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
	LUU DUC Cuong	Chimie Organique
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et Médecine préventiv
	MARECHAL Jean	Mécanique
	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
	MAYNARD Roger	Physique du Solide
	MICHOULIER Jean	Physique (I.U.T. "A")
	MICOUD Max	Maladies infectieuses
	MOREAU René	Hydraulique (INP)
	NEGRE Robert	Mécanique
	PARAMELLE Bernard	Pneumologie
	PECCOUD François	Analyse (IUT B)
	PEFFEN René	Métallurgie
	PELMONT Jean	Physiologie animale
	PERRET Jean	Neurologie
	PERRIN Louis	Pathologie expérimentale
	PFISTER Jean-Claude	Physique du Solide
	PHELIP Xavier	Rhumatologie
Mle	PIERY Yvette	Biologie animale

A la mémoire de mon Père,

et à ma Mère.

J'exprime ma respectueuse gratitude à Monsieur le Professeur L. NEEL, Prix Nobel de Physique, Membre de l'Institut, qui m'a admis au Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble.

Monsieur D. DAUTREPPE, Chef du Département de Recherche Fondamentale, et Monsieur J. PAULEVE, Chef de la Section de Physique du Solide, m'ont accueilli dans leurs laboratoires, je les en remercie sincèrement.

Je suis tout particulièrement reconnaissant à Monsieur le Professeur P. DUCROS et à Madame C. MINIER, Maître de Conférence, d'avoir bien voulu accepter de participer au jury.

Monsieur A. BOURRET m'a proposé ce travail et ce fut une grande chance pour moi que d'être initié par lui à la Microscopie Electronique et de pouvoir bénéficier tout au long de cette étude de ses hautes connaissances. Je lui témoigne toute ma gratitude.

Je voudrais aussi remercier vivement Monsieur J. HILLAIRET qui m'a offert de travailler sur le Nickel, pour toutes les fructueuses discussions que nous avons eues ensemble.

Au sein du groupe de Microscopie Electronique, j'ai trouvé d'emblée une excellente ambiance et j'ai pu apprécier la compétence de Messieurs J.M. PENISSON et C. CLOSSE ainsi que celle de mon ami L. LOMBARD et de Monsieur J. PELISSIER du Département de Métallurgie ; aussi je les assure de ma reconnaissance.

J'ai eu souvent recours à Monsieur BEYELER, du C.E.N. SACLAY, notamment pour les analyses d'échantillons. Monsieur BLANCHARD, également de SACLAY, a réalisé le chargement en hélium des échantillons de Nickel au moyen du cyclotron. Monsieur MAIRY s'est chargé de leur trempe. Messieurs PICHON et VANONI ont assuré la préparation des échantillons de Niobium alors que Monsieur GROS, du Service des Piles, s'est occupé de leurs irradiations et Monsieur VEAU de leur stockage. Je les remercie tous pour la collaboration efficace qu'ils m'ont apportée.

Enfin, je voudrais rendre hommage à tous ceux qui me sont venus en aide à un moment quelconque et que j'oublie de citer, non sans avoir tout spécialement remercié le personnel du Secrétariat de la Section de Physique du Solide, du Pool Dactylographique, et de l'Imprimerie.

PLAN DE LA THESE

CHAPITRE I. - RAPPELS SUR LES DEFAUTS PONCTUELS -

I.1. - Définition

I.2. - Concentration à l'équilibre thermodynamique et mobilité

I.3. - Revenu des défauts ponctuels

CHAPITRE II. - GONFLEMENT -

II.1. - Bilan et réarrangement des paires crées

II.1.1. - Bilan de création d'une paire

II.1.2. - Réarrangement

II.2. - Le Gonflement

II.2.1. - Influence de différents paramètres sur le gonflement

II.2.1.a. - Le domaine de température

II.2.1.b. - Autres paramètres

II.2.2. - Modèles pour la croissance des cavités sous irradiation

II.2.2.a. - Germination

II.2.2.b. - Croissance

II.2.2.c. - Calculs théoriques

CHAPITRE III. - MOYENS D'ETUDES -

III.1. - Rappels sur la théorie dynamique dans le cas d'un cristal parfait

III.2. - Contraste lié à la présence d'une cavité, mesure de leur taille

III.2.1. - Faible épaisseur

III.2.1.a. - $s = o$

III.2.1.b. - $s \neq o$

III.2.2. - Forte épaisseur

III.3. - Mesure de la densité de cavité

III.3.1. - Franges d'égales épaisseur

III.3.2. - Stéréoscopie

CHAPITRE IV. - RESULTATS EXPERIMENTAUX SUR LE NIOBIUM -

IV.1. - Le Niobium

IV.2. - Irradiations à 550°C et 600°C

IV.2.1. - Forme des cavités

IV.2.2. - Loi de nucléation

IV.2.2.a. - Dépendance en température

IV.2.2.b. - Dépendance en t

IV.2.2.c. - Dépendance en flux instantané ϕ_i

IV.2.3. - Influence de la température d'irradiation

IV.2.3.a. - Sur la taille et la densité des cavités

IV.2.3.b. - Sur la valeur du gonflement

IV.2.4. - Effet du flux instantané à fluence constante

IV.2.4.a. - Sur la densité et la taille des cavités

IV.2.4.b. - Sur le pic de gonflement

IV.2.5. - Effet de la dose à flux instantané constant

IV.2.5.a. - Sur la répartition des cavités

IV.2.5.b. - Sur la valeur du gonflement

IV.2.6. - Effet de l'écrouissage.

IV.3. - Irradiation à Haute Température

IV.3.1. - Mise en ordre d'impuretés dans le Niobium

IV.3.2. - Absence de gonflement à 0,39 T_F - 0,43 T_F - 0,53 T_F dans le Niobium

IV.3.2.a. - Augmentation du rayon critique de croissance

IV.3.2.b. - Résistance au gonflement d'alliages contenant des précipités semi-cohérents.

CHAPITRE V. - LE PROBLEME DE LA NUCLEATION -

V.1. - Influence des impuretés gazeuses sur la formation des défauts d'irradiation.

V.2. - Trempe sous haute pression de gaz

V.3. - Trempe par immersion

CONCLUSION -

INTRODUCTION

Avec l'avènement des réacteurs surgénérateurs à neutrons rapides, de nouveaux problèmes technologiques ont vu le jour, liés au fait que les différents composants sont soumis à des doses de neutrons très supérieures à celles rencontrées jusqu'alors dans les réacteurs thermiques.

En particulier, après un certain temps de fonctionnement, les gaines d'assemblage en acier se déforment et augmentent en volume.

Il a pu être établi que le phénomène responsable de ces effets était la précipitation de vides se produisant à l'intérieur du matériau à une température de plusieurs centaines de degrés qui est celle du coeur du réacteur lorsque ce dernier est en service.

CAWTHORNE et FULTON [1] furent les premiers à observer cette formation de cavités dans l'acier, mais on a pu constaté à la suite de ces travaux initiaux que bon nombre de métaux étaient affectés par ce phénomène [2, 3, 4, 5].

Dès lors, le problème était de tenter de le comprendre en vue d'élaborer un gainage qui, par sa composition et sa géométrie, soit capable de lui résister ; c'est dans cette optique que fut promu le programme "gonflement des métaux purs et alliages" au sein du C.E.A., et dont la présente étude, effectuée sur le Niobium, constitue une partie.

CHAPITRE I

LES DEFAUTS PONCTUELS DANS LES CRISTAUX

Dans la nature, un cristal n'apparaît jamais rigoureusement triplement périodique mais l'arrangement de ses atomes est au contraire perturbé par un certain nombre de défauts caractérisés par la déformation qu'ils induisent dans le réseau. Les défauts ponctuels, lacunes et interstitiels, sont les espèces les plus simples de défauts que l'on rencontre dans les cristaux.

I.1. - Définition :

Lorsqu'on arrache un atome du site atomique qu'il occupe dans le cristal pour le déposer à la surface, on laisse donc ce site inoccupé et l'on crée une lacune.

De même si l'on prend un atome à la surface du cristal pour le déposer entre deux sites atomiques déjà occupés, on forme un interstitiel.

I.2. - Concentration à l'équilibre thermodynamique et mobilité :

La formation de défauts ponctuels dans un cristal, comme elle nécessite un certain travail positif, augmente l'énergie interne du cristal. On définit ainsi, pour une température T supérieure à $0^{\circ}K$, une concentration de défauts ponctuels à l'équilibre thermodynamique comme étant celle pour laquelle l'enthalpie libre du cristal est minimum.

Or, l'enthalpie libre d'un cristal contenant n défauts d'une certaine espèce est égale à :

$$G = n E_f - T S + P \Delta V_f$$

où

E_f est l'énergie de formation du défaut considéré

S est l'entropie due à la présence des n défauts.

- Le terme $P\Delta V_f$ est négligeable à la pression ordinaire.

Ce qui, pour une espèce donnée, conduit à une concentration d'équilibre thermodynamique égale à [13]

$$c = e^{\frac{S_f}{k}} \; e^{-E/kT}$$

S_f est la variation d'entropie autre que celle de configuration.

- Pour migrer dans un site proche voisin, un défaut ponctuel doit vaincre une certaine barrière de potentiel ; on définit, à l'aide de la mécanique statistique, une fréquence moyenne de sauts pour le défaut :

$$\nu = \nu_o \; e^{-G/kT}$$

G est la différence de l'enthalpie libre du défaut entre le sommet de la barrière de potentiel et sa position d'équilibre

$G = E_m - TS$

E_m est l'énergie de migration du défaut

ν_o représente une fréquence de vibration effective pour le défaut que l'on prend égale à 10^{13} s^{-1} en général.

On a donc :

$$\nu = \nu_o \; e^{S/k} \; e^{-E_m/kT}$$

1.3 - Revenu des défauts ponctuels :

Par irradiation à basse température, il est possible de retenir les défauts ponctuels en sursaturation par rapport à leur concentration d'équilibre dans le métal. Si on leur communique, par un recuit postérieur,

une énergie suffisante, ces défauts pourront se réarranger selon des processus que l'on connait grâce à l'apport de certaines techniques : résistivité, traînage magnétique, frottement interne...

Un grand nombre de travaux ont ainsi eu pour objet l'étude des défauts ponctuels dans les métaux. Il est admis que leur élimination s'effectue en cinq stades principaux, dénommés I, II, III, IV, V, dans un ordre croissant de température.

- A très basse température, le stade I correspond à la migration des interstitiels qui soit, s'annihilent sur les lacunes immobiles, soit s'agglomèrent entre eux ou avec des atomes d'impuretés.

- Le stade II est attribué au réarrangement d'amas d'interstitiels.

- Le stade III est encore controversé. On peut toutefois l'interpréter dans la plupart des métaux comme étant dû au réarrangement soit d'amas lacunaires, soit d'interstitiels ou de complexes interstitiels-impuretés. Dans certains métaux, il semble aussi que la lacune migre au cours du stade III [6].

- Le stade IV s'interprète par la migration soit de monolacunes, soit de lacunes issues de la désintégration d'amas lacunaires.

- Au cours du stade V intervient le mouvement des dislocations.

L'argument essentiel à retenir pour la suite, est que l'interstitiel est dans tous les métaux plus mobile que la lacune qui ne commence à migrer que vers le stade IV ; on remarque expérimentalement que pour tous les métaux, ce stade est situé vers $0,2\ T_F$, T_F étant la température de fusion du métal.

CHAPITRE II

GONFLEMENT

Lorsqu'on irradie un métal par des neutrons, ou par tout autre particule, si les particules incidentes sont suffisamment énergétiques pour céder aux atomes qu'elles choquent une énergie supérieure à une certaine énergie seuil de déplacement E_d, ces atomes vont être déplacés de leur site. On crée ainsi des paires de défauts ponctuels. Dans le cas d'un bombardement neutronique, l'énergie maximum cédée à un atome choqué est égale à :

$$E = 4\,E\,\frac{Mm}{(M+m)^2}$$

M étant la masse du noyau choqué
m et E la masse et l'énergie des neutrons.

Pour des neutrons de 1 MeV, l'énergie transférée au premier atome rencontré ou primaire, est très supérieure à E_d qui est de l'ordre de quelques dizaines d'électron-volts ; ce primaire va être violemment éjecté et peut à son tour créer des défauts en choquant d'autres atomes : on crée ainsi des cascades de déplacements et un nombre important de paires lacune-interstitiel.

II.1. - Bilan et réarrangement des paires créées.

II.1.1. - Bilan de création d'une paire

La création d'une paire de Frenkel par irradiation est équivalente à la formation :

- d'une lacune par enlèvement d'un atome sur un site atomique et son transport à la surface où il va occuper un volume $v_{at.}$; le site inoccupé va être la source de phénomènes de relaxation ; le volume de formation de la lacune est donc égal à $v_{at} + v_{Relax}$.

v_{Relax} est en général < o et très inférieur à v_{at}.

- et d'un interstitiel par enlèvement d'un atome à la surface, où il occupait un volume v_{at}, et mise en position interstitielle où il va occuper un volume v_i de l'ordre de 1,5 v_{at}. Le volume de formation de l'interstitiel est donc égal à $- v_{at} + v_i$.

La formation d'une paire s'accompagne donc d'une variation de volume $v_i + v_{Relax}$ dans l'échantillon.

Si la température d'irradiation est suffisante, les défauts sont mobiles et vont pouvoir se réarranger.

II.1.2. - Réarrangement

Les différents processus de réarrangement des défauts ponctuels sont essentiellement :

- l'annihilation lacune-interstitiel
- l'annihilation sur des puits existants dans le métal (dislocations, joints de grains)
- l'agglomération sous forme d'amas.

Dans la suite de la discussion, nous nous plaçons au delà de l'annihilation lacune-interstitiel, qui conduit à un bilan nul, pour ne considérer que l'intéraction avec les puits et l'agglomération.

Les dislocations sont des puits efficaces pour les défauts ponctuels qui vont être en partie absorbés par elles ; cette interaction se traduit par la montée des dislocations et la diffusion des crans [7].

En outre, en raison de la plus grande déformation du réseau induite par l'interstitiel, l'interaction interstitiel-dislocation est plus forte que l'interaction lacune-dislocation [8]. Ham [9] a montré que l'on pouvait traiter le problème en utilisant pour les interstitiels un rayon de capture par les dislocations r'_c majoré d'une quantité Δr_c par rapport au rayon de capture r_c des lacunes par les dislocations

$$r'_c = r_c + \Delta r_c$$

$$\Delta r_c = 0,07 \frac{b\, a^3\, \mu\, \varepsilon}{kT}$$

b est le vecteur de Burger de la dislocation
a le paramètre cristallin
μ le module de cisaillement
ε un paramètre lié à la déformation du réseau induite par l'interstitiel.

Cette attirance préférentielle va donc laisser subsister dans le métal irradié, une sursaturation lacunaire dont le réarrangement va décider du comportement du métal vis à vis du gonflement :

- l'interstitiel d'une paire donnée, lorsqu'il s'annihile sur une dislocation, disparâît en tant que défaut ponctuel et provoque la montée de celle-ci qui s'accompagne d'une augmentation de volume du cristal égale à un volume atomique ; l'annihilation de l'interstitiel entraîne donc une variation de volume égale à :

$$- v_i + v_{at}$$

A ce stade, dans le cristal, en tenant compte du volume de formation de la paire, la variation de volume est donc :

$$v_i + v_{Relax} - v_i + v_{at}$$

$$= v_{Relax} + v_{at}.$$

- si la lacune s'annihile également sur une dislocation ou si elle s'agglomère sous forme de boucle avec d'autres lacunes, le cristal va subir une variation de volume égale à $- v_{at}$; comme la lacune disparaît par la même occasion du réseau, on aura à la suite de la recombinaison lacunaire une variation de volume :

$$- v_{at} + v_{at}$$

qui compensera exactement l'augmentation de volume subsitant à la suite de l'annihilation de l'interstitiel.

- si par contre la lacune est absorbée par une cavité à la surface de laquelle il n'y a pas de relaxation, seule intervient la variation de volume $-v_{Relax}$ et il subsiste une augmentation de volume v_{at} du cristal, d'où un gonflement de ce dernier.

II.2. - Gonflement -

Au terme de l'irradiation, si N lacunes se sont agglomérées en cavités, le gonflement du métal est donc égal à $N\, v_{at}$.

- Soit n le nombre de lacunes s'étant groupées en cavités par unité de volume ; on peut écrire :

$$\frac{\Delta V}{V} = n\, v_{at}.$$

Si x est le nombre moyen de cavités par unité de volume $\bar{v}$ leur volume moyen, ces cavités contiennent en moyenne U lacunes et l'on a :

$$\bar{v} = U\, v_{at}$$

$$n = x\, U$$

$$\text{donc } \frac{\Delta V}{V} = n\, v_{at}$$

$$= x\, U v_{at}$$

$$\boxed{\frac{\Delta V}{V} = x\, \bar{v}}$$

II.2.1.- Influence de différents paramètres sur le gonflement

II.2.1.a. Température d'irradiation

Afin d'établir un lien entre les différents métaux, il est bon de raisonner à partir du point de fusion T_F de ceux-ci.

Nous avons déjà vu que si les lacunes sont immobiles, elles constituent des pièges fixes pour les interstitiels ; le gonflement d'un métal ne peut donc se produire que pour des températures telles que les lacunes puissent migrer, c'est-à-dire supérieures pour un métal donné à $0,25\ T_F$.

D'autre part, la concentration de lacunes résultant de l'irradiation doit être en sursaturation par rapport à la concentration d'équilibre thermodynamique.

De plus, lorsque la température d'irradiation s'élève, les dislocations et les impuretés, présentes en solution ou sous forme de précipités, deviennent mobiles et piègent plus facilement les lacunes. Pour toutes ces raisons, on constate expérimentalement une limite supérieure de la température d'irradiation située vers $0,55\ T_F$.

II.2.1.b. - Autres paramètres

A l'intérieur de ce domaine de température, la variation des paramètres d'irradiation modifie les phénomènes observés (taille et densité des cavités), et par conséquent la valeur du gonflement. Nous reviendrons plus en détails par la suite sur l'effet :

- de la température qui influe sur la mobilité des défauts et des dislocations ainsi que sur la valeur de la sursaturation

- du flux et de la dose de neutrons qui commandent la création des défauts dans la matrice

- des traitements initiaux qu'a subi l'échantillon : (écrouissage, recuit) qui introduisent une concentration variable de puits (dislocations, joints de grains) pour les défauts ponctuels

- des impuretés qui modifient le réarrangement des défauts en les piégeant, ou en modifiant les propriétés spécifiques du métal donc la mobilité des défauts.

II.2.2. - Modèles pour la croissance des cavités sous irradiation

II.2.2.a. - Germination

La nature du germe à partir duquel une cavité grossit est encore mal connue. On pense que la nucléation est soit homogène et s'effectue alors au hasard dans le métal à partir d'un amas lacunaire résultant de l'irradiation, soit hétérogène, le rôle de germe étant alors assumé par des atomes d'impuretés gazeuses.

Plusieurs modèles de croissance des cavités ont été élaborés à partir d'hypothèses différentes sur la germination des cavités [10, 11, 12]. Le modèle de GOMOLINSKI et BREBEC [12] nous paraît être le plus réaliste en s'appuyant sur une loi de nucléation empirique de la forme :

(1) $$N = \alpha\, t^{n} \exp. - \beta\, T/T_F$$

où α β et n sont des paramètres ajustés expérimentalement
N est le nombre de cavités par unité de volume après un temps t d'irradiation à la température T.

II.2.2.b. - Croissance

Le principe de ce modèle consiste à considérer que les défauts sont produits de façon homogène et à un taux constant. A l'aide du modèle de la théorie cinétique chimique, on tient compte de la recombinaison des défauts en supposant qu'elle est très rapide et qu'à chaque instant, on a équilibre entre leur production et leur élimination.

On peut ainsi écrire les équations :

(2) $$\frac{dC_l}{dt} = G - K_{ii}\, C_l C_i - K_{dl}\,(C_l - C_{lo}) - K_{cl} \sum_n X_n R_n \left(C_l - C_{lo} e^{\frac{2\Gamma\Omega}{R_n kT}}\right)$$

(3) $$\frac{dC_i}{dt} = G - K_{ii}\, C_i C_l - K_{di} C_i - K_{ci} \sum_n X_n\, R_n\, C_i$$

avec à chaque instant
$dC_l = dC_i$

- C_l et C_i sont les concentrations de lacunes et d'interstitiels par atome et par seconde

- C_{lo} est la concentration d'équilibre thermique des lacunes ; (la concentration d'équilibre C_{io} des interstitiels est faible et on la néglige devant C_i)

- G est le taux de production de défauts par atome et par seconde

- K_{il} est le taux de recombinaison interstitiel-lacune

$K_{il} = \nu_i \times Z$ ν_i étant la fréquence de sauts des interstitiels qui s'écrit aussi en fonction de leur coefficient de diffusion D_i et du paramètre cristallin a

$$\nu_i = \frac{D_i}{a^2}$$

Z est le nombre de proches voisins.

- K_{dl} est le taux d'annihilation des lacunes sur les dislocations

$K_{dl} = \alpha_{dl} D_l$ D_l étant le coefficient de diffusion des lacunes. Le coefficient α_{dl} se calcule en considérant la dislocation comme un puits cylindrique de longueur infinie. On trouve [18]

$$\alpha_{dl} = \frac{2\pi N_o}{\text{Log } \frac{r1}{r_c}}$$

N_o est la densité de dislocations

r_1 est la demi distance moyenne entre deux dislocation

r_c est le rayon de capture de la dislocation

- De même pour les interstitiels on peut écrire :

$$K_{di} = \alpha_{di} D_i \quad \text{avec} \quad \alpha_{di} = \frac{2\pi N_o}{\text{Log } \frac{r1}{r_C + \Delta r_c}}$$

le terme Δr_c traduisant l'attirance préférentielle des interstitiels par les dislocations [9]

- K_{cl} est le taux d'annihilation des lacunes sur les cavités

$K_{cl} = \alpha_{cl} D_l$ avec $\alpha_{cl} = 4\pi$

On montre en effet [18] que pour des puits sphériques de rayon R

$\alpha_{cl} = 4\pi RX$ si X est le nombre de puits

- on a aussi $K_{ci} = 4\pi D_i$

- En outre, le flux de lacunes vers les puits n'est pas proportionnel à C_l mais à C_l moins la concentration d'équilibre à la surface des puits.

Par des considérations thermodynamiques sur le potentiel chimique d'une lacune au voisinage d'une surface courbe, on montre que la concentration d'équilibre des lacunes autour d'une cavité de rayon R est égale à [14].

$$C = C_{lo} \exp \frac{2\Gamma\pi}{RkT} \qquad (4)$$

où Γ est l'énergie de surface de la cavité Ω le volume atomique ,

C_{lo} la concentration d'équilibre thermique.

On suppose en outre que les dislocations maintiennent à leur voisinage la concentration d'équilibre thermique.

- Les concentrations C_l et C_i vont évoluer avec le temps puisque la densité de puits (cavités, dislocations) varie ;

- La vitesse de croissance d'une cavité de rayon R (augmentation de son volume par unité de temps) est donnée par la différence entre le flux de lacunes et d'interstitiels qui arrivent à sa surface par unité de temps

$$\frac{dV}{dt} = \Omega \times [K_{cl} \times R (C_l - C_{lo} e^{\frac{2\Gamma\Omega}{RkT}} - K_{ci} R C_i]$$

$$\frac{dV}{dt} = 4 \pi R \Omega [D_l C_l - D_i C_i - D_l C_{lo} e^{\frac{2\Gamma\Omega}{RkT}}] \qquad (5)$$

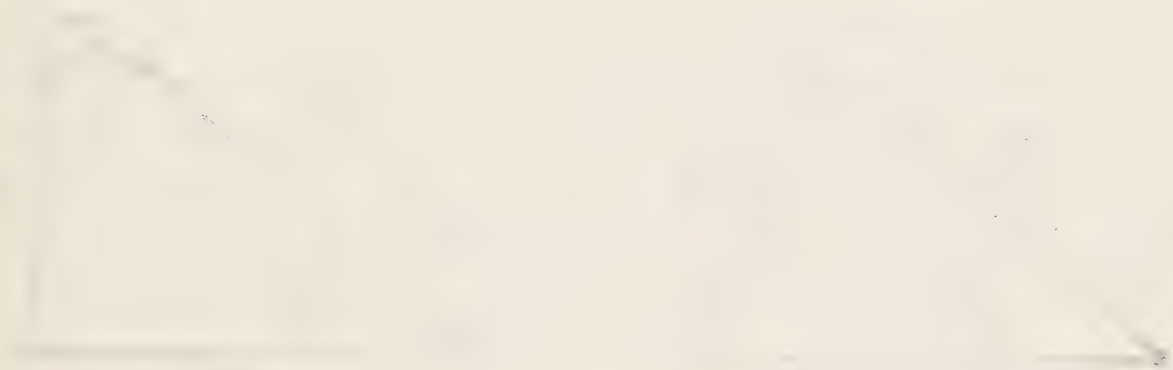
II.2.2.c. - Calculs théoriques

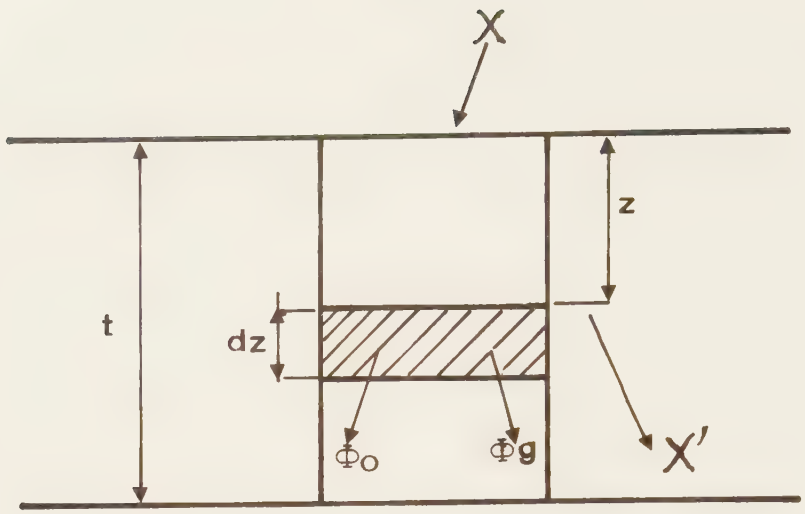
En partant de ce modèle de diffusion, Gomolinski et Brebec ont établi un programme de calcul numérique qui permet de prévoir l'influence des différents paramètres d'irradiation sur la gonflement des métaux.

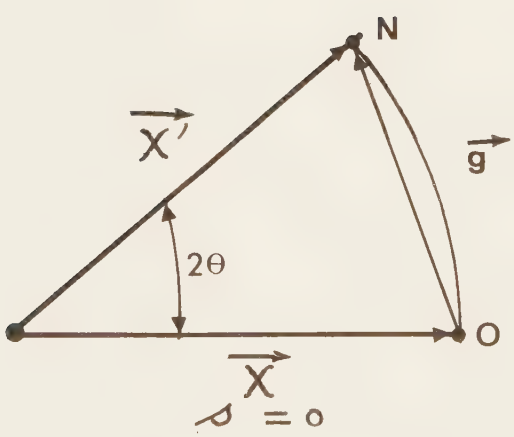
Dans le principe, ce programme consiste à diviser le temps d'irradiation t en une somme d'itérations de durée Δt pendant laquelle le système est supposé être dans un état stationnaire.

Une boucle parcourue autant de fois qu'il y a d'itérations permet d'obtenir à la $i^{ème}$ itération

- le nombre de cavités et de dislocations en fonction de lois de nucléation choisies au départ. L'équation 1 rend compte de la loi de germination choisie pour les cavités.
- les concentrations C_l et C_i
- l'augmentation de volume des cavités présentes à la i - $1^{ième}$ itération.
- a la fin du calcul (donc lorsque $\Sigma \Delta t = t$ temps d'irradiation) on peut donc avoir le nombre de cavités ainsi que leurs répartition en taille et par conséquent la valeur du gonflement.
- Ces résultats peuvent aussi être connus toutes les p itérations, ce qui permet de suivre l'évolution du gonflement en fonction du temps.







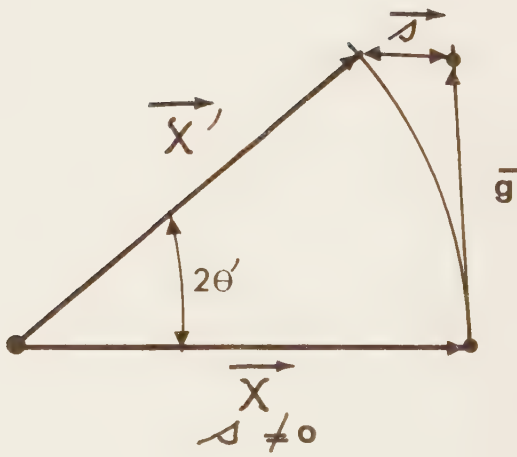


Fig 1

CHAPITRE III

MOYENS D'ETUDE

L'étude du gonflement du Niobium a été réalisée à l'aide de la microscopie électronique en transmission ; grâce à cette technique les cavités peuvent être visualisées directement et nous pouvons ainsi connaître leur contribution spécifique au gonflement. Elle présente donc un avantage sur certaines autres méthodes (comme la densitométrie) avec lesquelles on n'est pas assuré de ne mesurer que la variation de volume due à la présence des cavités.

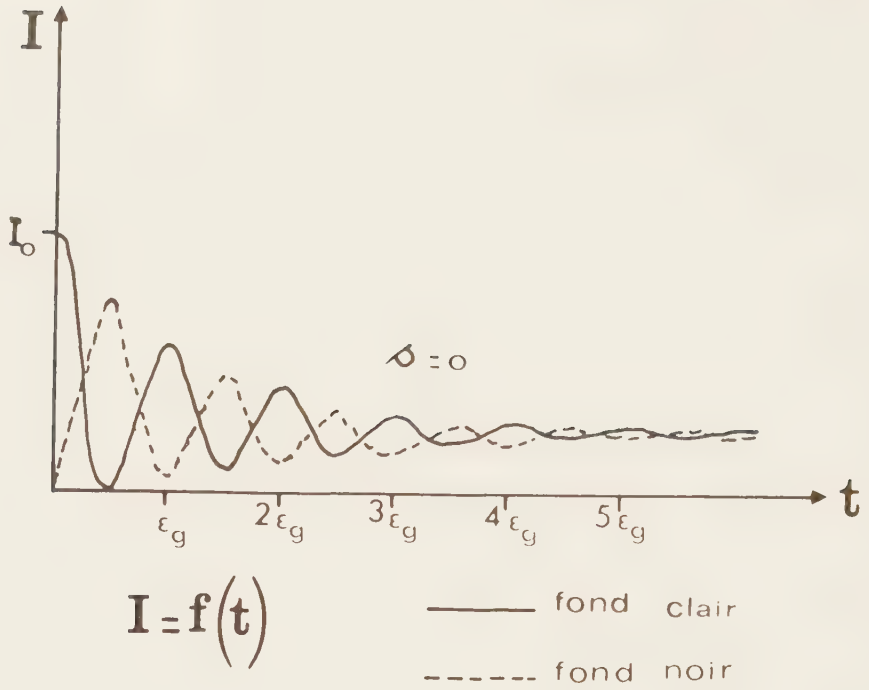
Les électrons diffèrent essentiellement des rayons X par un pouvoir de pénétration beaucoup plus faible dans les cristaux d'où la nécessité d'utiliser des échantillons très minces, et par une section efficace de diffusion bien supérieure (de l'ordre de 10^4 fois celle des rayons X). Il est donc nécessaire, pour interpréter les images que nous donne l'appareil de développer la théorie dynamique de la diffraction qui tient compte des interactions entre ondes incidente et diffractées.

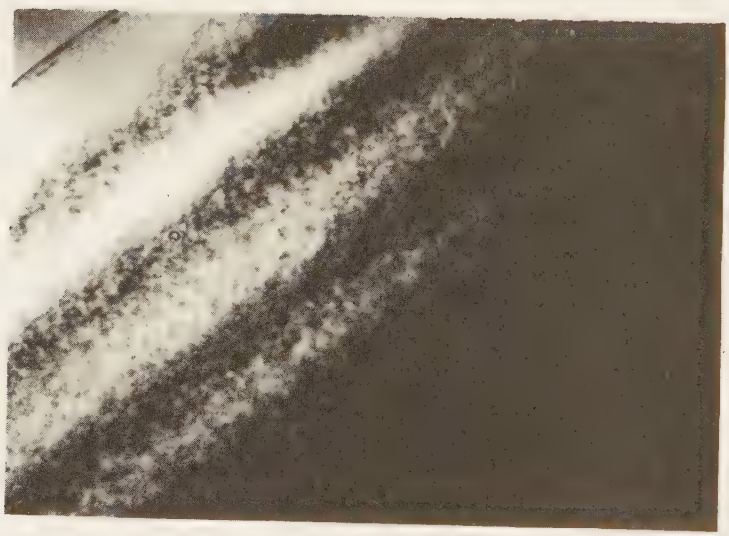
III.1. - Rappels sur la théorie dynamique dans le cas d'un cristal parfait

Dans l'approximation à deux ondes, qui consiste à supposer qu'une seule famille de plans réticulaires est en position de Bragg, donc que l'on n'a qu'une seule onde diffractée, l'électron se propageant dans une colonne de cristal peut être décrit par une fonction d'onde ψ (r) donnée par [15].

$$\psi(r) = \phi_0(z) \exp(2\pi i \chi r) + \phi_g(z) \exp(2\pi i \chi' r)$$

- ϕ_0 est l'amplitude de l'onde dans la direction $\vec{\chi}$ du vecteur d'onde dans le vide de l'électron incident.
- ϕ_g l'amplitude de l'onde diffractée
- $\vec{\chi}'$ le vecteur d'onde de l'onde diffractée





Franges d'égale épaisseur

Fig 2

on a : $|\vec{X'}| = \vec{X}$

$$\vec{X'} = \vec{X} + \vec{g} + \vec{s}$$

$\vec{s}$ étant le vecteur erreur à la position de Bragg (fig. 1).

- A la sortie d'un cristal d'épaisseur t les intensités des ondes transmise et diffractée sont complémentaires et s'écrivent [15], lorsque l'on néglige l'absorption :

$$I = |\phi g\ (t)|^2$$

$$= 1 - |\phi_o\ (t)|^2$$

$$= \left(\frac{\pi}{\varepsilon_g}\right)^2 \frac{\sin^2 \pi t\, s_{eff}}{(\pi s_{eff})^2}$$

avec $s_{eff} = \sqrt{s^2 + 1/\varepsilon_o^{\ 2}}$

ε_o est la distance d'extinction.

- On peut opérer en champ clair ou en champ noir, selon que l'on sélectionne le rayon transmis ou le rayon diffracté.

- ε_o est une quantité liée au facteur de diffusion atomique appelée distance d'extinction.

On remarque en effet que les intensités oscillent lorsque t varie. En particulier, lorsque s = o (condition de Bragg), $s_{eff} = 1/\varepsilon_o$ et la période des maxima et minima est égale à ε_g ; entre deux franges d'égale épaisseur, la variation de t est alors égale à ε_o, ce qui fournit un moyen de mesurer l'épaisseur d'une plage donnée. En pratique il faut aussi tenir compte d'un effet d'absorption qui fait que l'on n'observe ces franges que dans les régions très minces d'un cristal (bords) et que l'on n'en voit guère plus de cinq (fig. 2) car l'intensité des maxima, décroit en $e^{-\mu z}$

III.2. - <u>Contraste lié à la présence d'une cavité ; mesure de leur taille</u> -

Les amplitudes des ondes transmise et diffractée dans un cristal à l'épaisseur z, peuvent être déduites des amplitudes de ces ondes à l'entrée du cristal grâce à la relation matricielle [15].

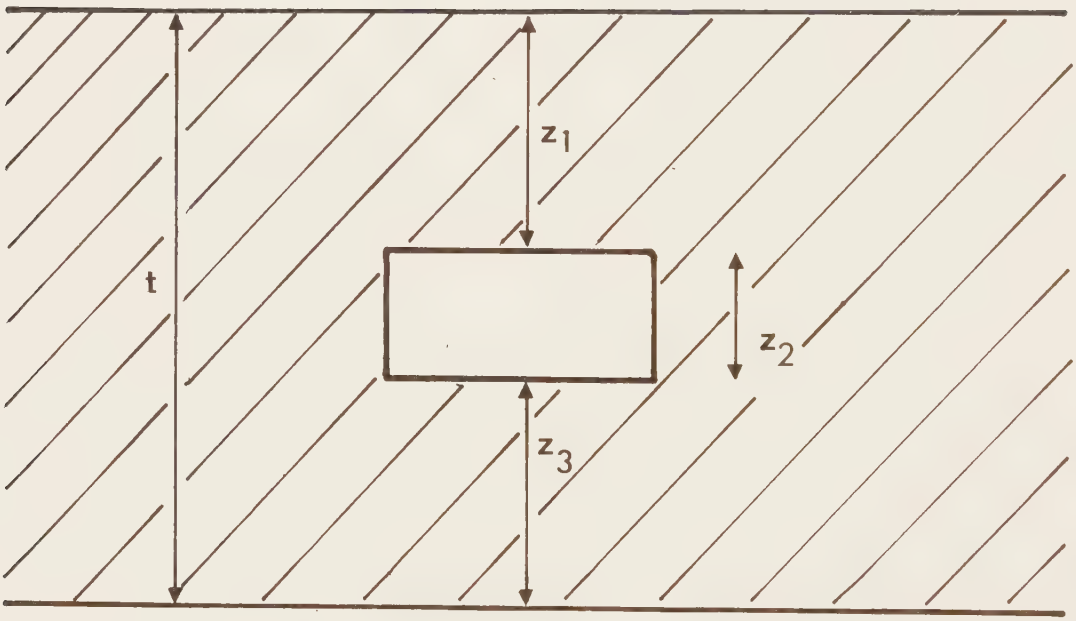


Fig 3

$$\begin{matrix} \phi_o\ (z) \\ \phi_g\ (z) \end{matrix} = P\ (z) \begin{matrix} \phi_o\ (o) \\ \phi_g\ (o) \end{matrix}$$

avec $\phi_o\ (o) = 1$

$\phi_g\ (o) = 0$

P (z) est la matrice de diffusion de la lame.

Une colonne d'un cristal renfermant une cavité d'épaisseur z_2 peut se diviser en trois régions (fig. 3) ;

- l'une d'épaisseur z_1 située au dessus de la cavité
- la partie contenant le vide d'épaisseur z_2
- la région d'épaisseur z_3 située au dessous de la cavité

on a évidemment $z_1 + z_2 + z_3 = t$

Pour cette colonne, la matrice P (z) peut donc se décomposer en un produit des trois matrices de diffusion de chacune des régions

$$P\ (z) = (P\ (z_3))\ (V\ (z_2))\ \ (P\ (z_1))$$

On montre [16] que pour la région de vide d'épaisseur z_2 (dans laquelle la distance d'extinction ε_g est infinie) la matrice V (z_2) est égale à :

$$V\ (Z_2) = \begin{matrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{matrix} \quad e^{2\pi i s z_2}$$

III.2.1. - Faible épaisseur

Lorsque les plages sont suffisamment minces ($t < 4\ \varepsilon_g$) nous avons vu que l'intensité oscillait en fonction de l'épaisseur.

III.2.1.a. - $s = 0$.

- V (z_2) se réduit alors à la matrice unité donc P (z) = P (z_3) P (z_1)
- la différence d'intensité entre une colonne de cristal parfait et la colonne contenant la cavité est celle qu'il existe entre une plage d'épaisseur t et une autre d'épaisseur $z_1 + z_3 = t - z_2$.

La cavité apparaîtra donc en clair ou en sombre sur le fond continu selon la valeur de t et de z_2.

III.2.1.b. - $s \neq 0$

Dans ce cas le contraste ne dépend pas uniquement de $(z_1 + z_3)$ mais des valeurs séparées de z_1 et z_3, donc de la position de la cavité dans le cristal ; cependant, la cavité pourra encore être visualisée sur le fond continu.

Sur les plages minces, les cavités sont donc suffisamment visibles et la mesure de leur taille ne pose pas de problème.

III.2.2. - Fortes épaisseurs ($t > 4\,\varepsilon$)

- Vers les valeurs élevées de t l'intensité n'oscille plus en raison des effets d'absorption normale qui varient en $e^{-\mu z}$, et seules les cavités dont la taille est suffisamment élevée pour provoquer une variation notable de ce facteur se détacheront en clair du fond continu.

- Pour visualiser les autres cavités il faut avoir recours à un moyen d'investigation différent :

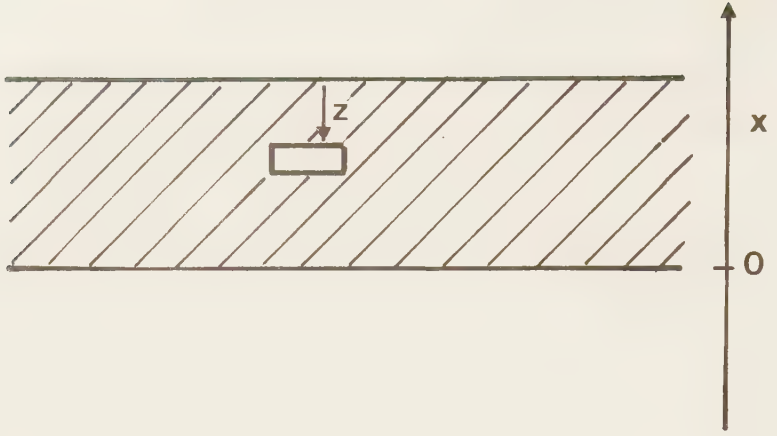
Un rayon qui traverse une cavité d'épaisseur z_2 subit un déphasage égal à $e^{-2\pi i \varepsilon_o z_2}$ par rapport à un autre qui reste dans le cristal parfait ; ce changement de phase est dû à la différence du potentiel interne V_o dans le cristal parfait et dans le vide où il est nul

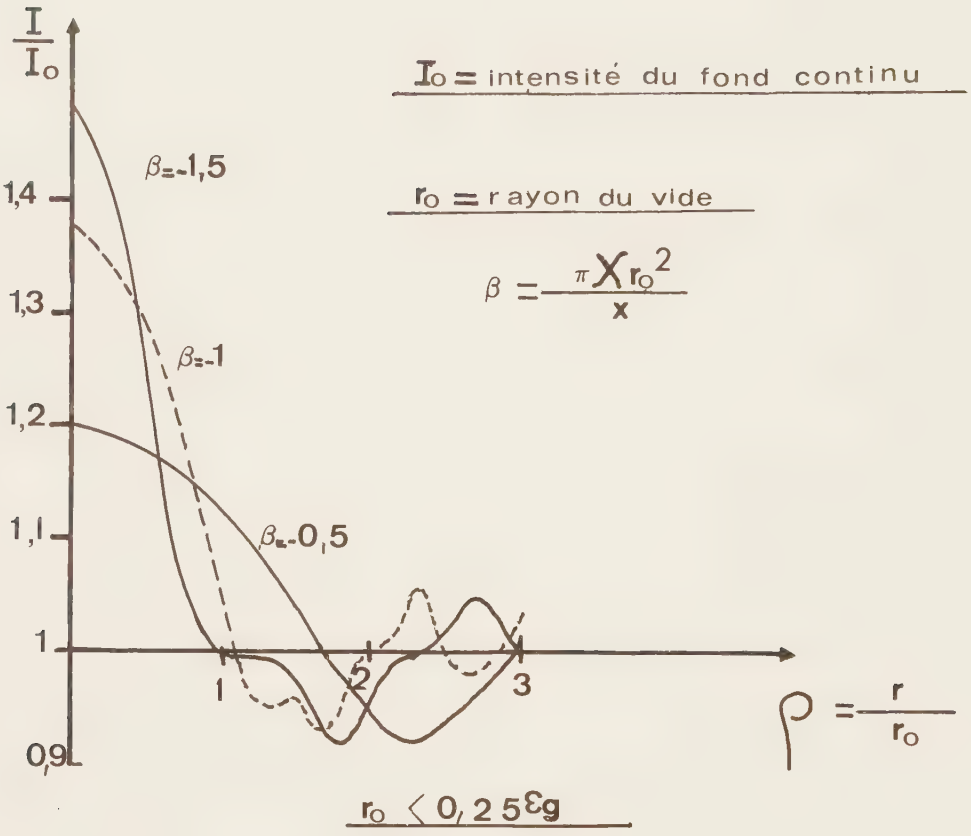
ε_o est l'indice de réfraction du métal

$$\varepsilon_o = - \frac{eV_o}{2E} \chi_o$$

e est la charge de l'électron
E et χ_o l'énergie et le vecteur d'onde dans le vide des électrons.

Ce facteur de phase peut être négligé si l'on focalise l'image de l'objet sur l'écran, donc dans les conditions d'observation les plus courantes, mais il devient très important si l'on défocalise, c'est-à-dire si l'on fait, avec la lentille objectif, l'image d'un plan situé à une distance x de la surface de sortie de la lame observée (fig. 4). L'axe des x ayant son origine sur cette surface de sortie et étant orienté vers le haut :



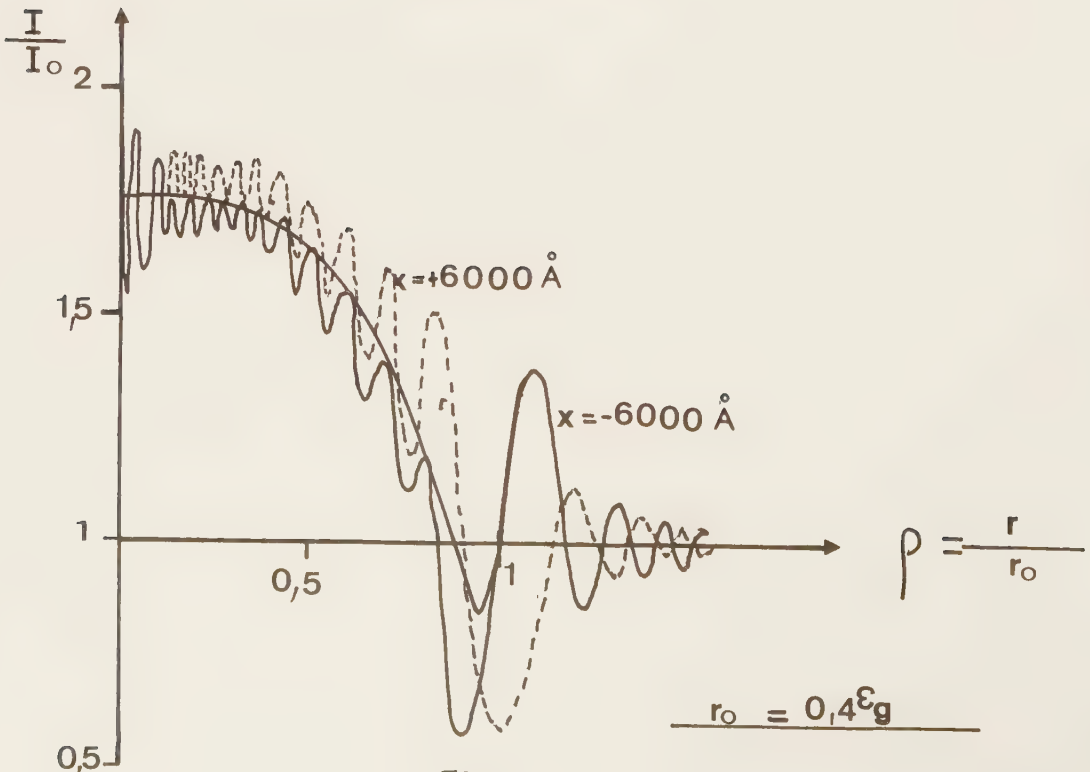


I_o = intensité du fond continu

r_o = rayon du vide

$$\beta = \frac{\pi \chi r_o^2}{x}$$

$r_o < 0{,}25 \varepsilon_g$



$r_o = 0{,}4 \varepsilon_g$

Fig 4

Si $x > o$ l'image de la lame est surfocalisée

$x = o$ l'image est focalisée

$x < o$ l'image est sous-focalisée.

Le champ d'onde dans le plan situé à la distance x peut être déduit du champ d'onde en $x = o$ (face de sortie de la lame). Les calculs réalisés par ULHE [17] montrent (fig. 4) que le contraste dû aux cavités, qui se manifestent par le facteur de phase discuté précédemment, devient important lorsque l'on défocalise, surtout pour les cavités de taille réduite ($< 0{,}25\ \varepsilon_o$).

- Ces calculs révèlent que le contraste dû à la présence d'une cavité apparaît, pour les valeurs de x négatives, sous la forme d'un centre clair entouré par une série de franges noires et brillantes ; cependant seule la première frange noire est assez intense pour être visible et l'on remarque sur la figure 4 que :

- pour les petites cavités ($r_o < 0{,}25\ \varepsilon_o$) cette frange noire est située au delà de leur rayon réel ro qui est donc proche de celui du centre clair.

- pour les vides de plus grosse taille ($r_o > 0{,}25\ \varepsilon_o$) la frange noire est comprise à l'intérieur de l'échelle $\rho = \dfrac{r_o}{r_c} = 1$; il faut donc dans ce cas, pour connaître r_o, mesurer les dimensions de la figure constituée par le centre clair et la frange noire qui lui est adjacente.

III.3. - Mesure de la densité de cavités

Une fois la taille des cavités déterminée, on doit encore connaître leur densité pour évaluer le gonflement, c'est-à-dire mesurer l'épaisseur de la plage sur laquelle elles ont été comptées :

III.3.1. - La méthode des franges d'égale épaisseur entrevue précédemment est assez délicate à appliquer car :

- d'une part, elle exige de disposer de plages suffisamment minces pour que l'intensité oscille,

- par ailleurs, pour avoir une mesure précise, il faut se placer à la condition $s = o$ (pour que la périodicité soit égale à ε_o), ce qui est difficile à réaliser avec exactitude.

On a donc souvent recours à la stéréoscopie.

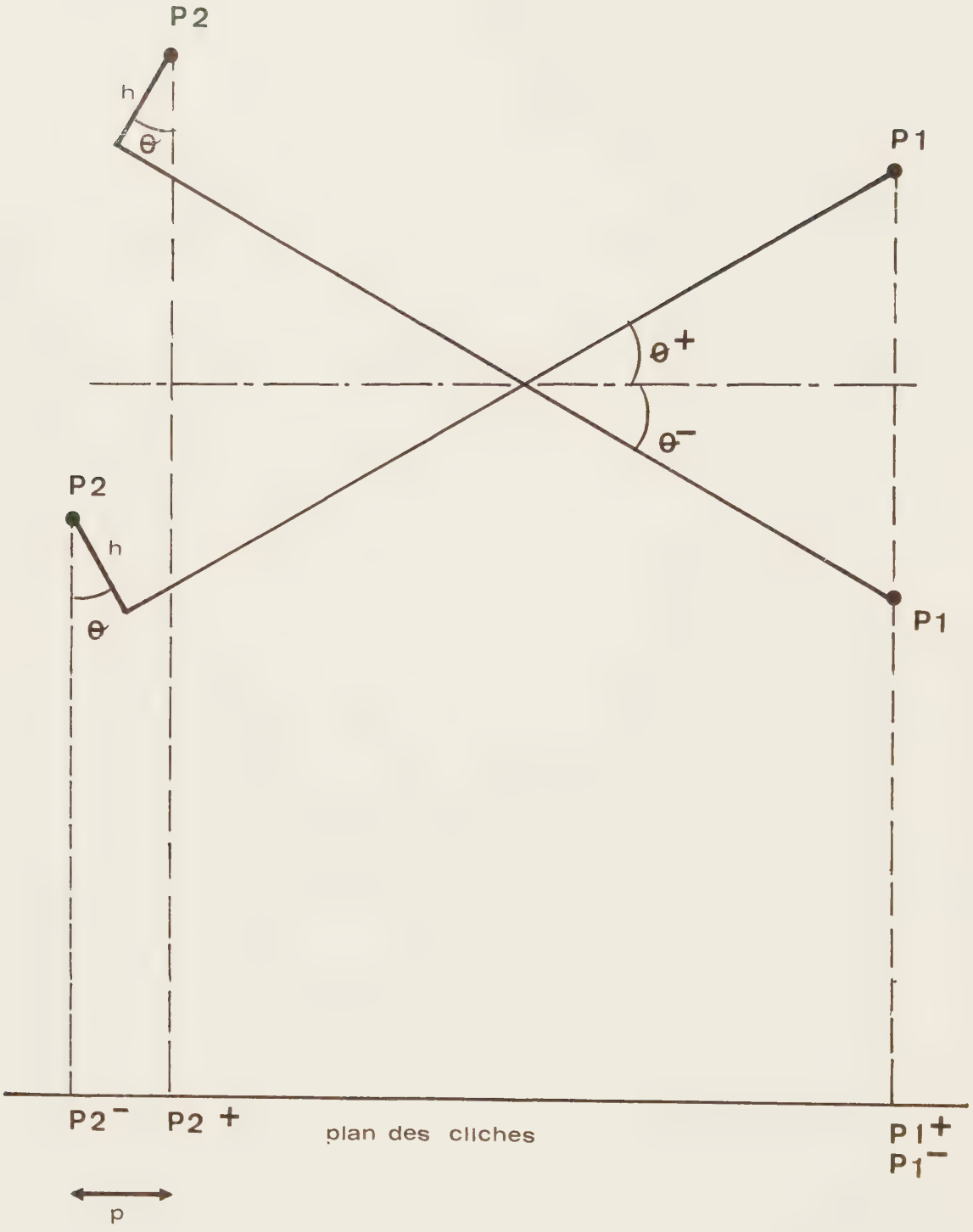


Fig 5

III.3.2.- Stéréoscopie

Le principe est de réaliser deux clichés d'une même plage mais en faisant varier son inclinaison. Si l'on incline en particulier la plage de $+\theta$ et de $-\theta$ par rapport au plan horizontal qui est le plan de la plaque photographique, deux points P_1 et P_2 situés sur chacunes des faces de la lame se projettent en (fig. 5)

P_1^+ et P_2^+ sur le premier cliché

P_1^- et P_2^- sur le second.

On définit la parallaxe p comme étant égale à :

$$p = P_1^- P_2^- \qquad P_1^+ P_2^+$$

Si M est le grossissement des deux micrographies, l'épaisseur h de la lame est reliée à p par la relation :

$$h = \frac{p}{2M\sin\theta}$$

Par la mesure de p, on a donc accès à la valeur de h. En général on repère les deux faces de la lame, à l'aide des lignes de dislocations qui, si elles ne sont pas arrêtées par un précipité ou un autre défaut, traversent la lame de part en part.

CHAPITRE IV

RESULTATS EXPERIMENTAUX SUR LE NIOBIUM

IV.1. - Le Niobium -

L'étude du comportement des défauts ponctuels dans les métaux cubiques centrés réfractaires, caractérisés par un point de fusion T_F élevé, n'a pu être entreprise que récemment en raison des difficultés importantes que rencontraient les expérimentateurs, pour les purifier notamment.

On classe ces métaux en deux groupes :

- le groupe V : Nb, Ta, V. : les métaux de ce groupe offrent une grande solubilité aux impuretés interstitielles : H, C, O, N,. La chaleur de la réaction de solution étant négative, les concentrations d'impuretés diminuent lorsque la température augmente. Une température proche du point de fusion et un ultra-vide sont nécessaires à leur dégazage.

- le groupe VI : Mo, W : la solubilité de ces impuretés est faible pour ces métaux et la chaleur de dissolution est positive. Leur purification est donc possible dans un vide et une température moins élevés.

La réactivité du Niobium avec l'oxygène est très élevée [19] et ce gaz influence fortement le revenu des défauts ponctuels dans le métal [20, 21] ; comme dans le Molybdène l'interstitiel migre à très basse température (< 50 K) au cours du stade I. Le stade III (situé vers $0,15T_F$) est très important dans le Molybdène pur alors qu'il est lié à la présence

des impuretés dans le Niobium. La valeur de l'énergie de migration de la lacune est encore à confirmer ; elle semble être de l'ordre de 1 ev.

Les échantillons de niobium que nous avons étudiés étaient issus d'un lingot de très haute pureté, (sa teneur en impuretés métalliques étant de l'ordre de 20 ppm) laminé jusqu'à 50 µ.

Ils se présentaient donc sous la forme de petites plaquettes d'environ 1 cm^2 et avaient subi différents traitements avant l'irradiation afin de faire varier leur degré d'écrouissage :

- pour le Niobium brut de laminage, non recuit, le taux d'écrouissage était élevé (100 %). Ces lames possédaient une densité de dislocations de l'ordre de $2.10^{10}/cm^2$ et une structure cellulaire dont les dimensions étaient de quelques microns.

- Les échantillons provenant de rubans recuits 24 H sous un vide de 5.10^{-7} Torr à 1800°C contenaient environ 10^{10} dislocations/cm^2 et des grains de 50 à 100 µ.

- Enfin dans du Niobium recuit à 2000°C sous 5.10^{-8} Torr, la densité de dislocations était inférieure à $10^9/cm^2$ et les grains avaient des dimensions de plusieurs centaines de µ.

Les résultats d'une analyse de la teneur en impuretés gazeuses sont rassemblés dans le tableau ci-dessous :

	O_2 µg/g	N_2 µg/g	C µg/g
Nb écroui (non recuit)	79,5	79	1,1
Nb recuit à 1800°C sous 5.10^{-7} Torr	26,5	16	5,2
Nb recuit à 2000°C sous 5.10^{-8} Torr	29,5	15,5	43

Tous ces échantillons ont été irradiés aux neutrons dans la pile Siloe à des flux, doses, et températures variables. En général ils sont ressortis très oxydés de l'irradiation.

Ils étaient ensuite rendus observables par microscopie électronique en subissant un amincissement chimique dans un bain composé de 60 % d'acide Nitrique et de 40 % d'acide fluorhydrique à 0°C. Ce procédé qui s'était avéré très satisfaisant pour le Niobium non irradié a cependant donné des résultats beaucoup moins bons lorsqu'il fut appliqué au métal irradié, sans doute en raison de l'oxydation qui résultait de l'irradiation. Celle-ci s'effectuait en effet sous atmosphère de He ou de Ne mais dont le vide préalable n'était pas meilleur que 10^{-3} Torr; dans ces conditions, pour des températures d'irradiation supérieures à 500°C, le niobium absorbait une importante quantité d'oxygène. La solubilité de l'oxygène dans le Niobium à 750°C. est égale à 1,1 at % et atteint 5,5 at % à 1550°C [22].

La présence de cavités dans le Niobium n'a été mise en évidence que pour des températures d'irradiation égales à 550°C et 600°C. Nous allons donc tout d'abord discuter nos résultats expérimentaux obtenus pour ces deux températures, et reviendrons par la suite sur le problème posé par les irradiations effectuées à des températures supérieures : 800°C, 900°C, 1200°C.

IV.2. - Irradiations à 550°C et 600°C

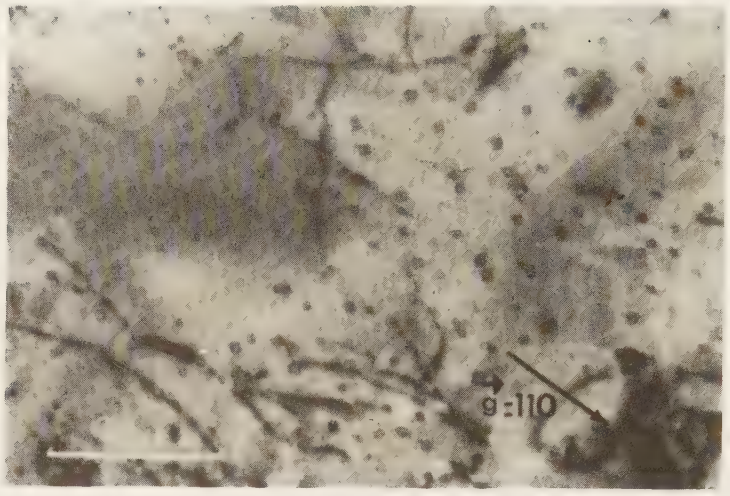
Des échantillons de niobium recuits et écrouis ont été irradiés à des températures de 550 et 600°C (respectivement 0,30 T_F et 0,32 T_F) avec des neutrons d'énergie $\geq$ 1 Mev, à des flux et doses variables ; dans tous ces échantillons des cavités, donc un gonflement, ont été observés à l'issue de l'irradiation. Les principaux résultats sont rassemblés dans le tableau I de la page suivante.

IV.2.1.- Forme des cavités

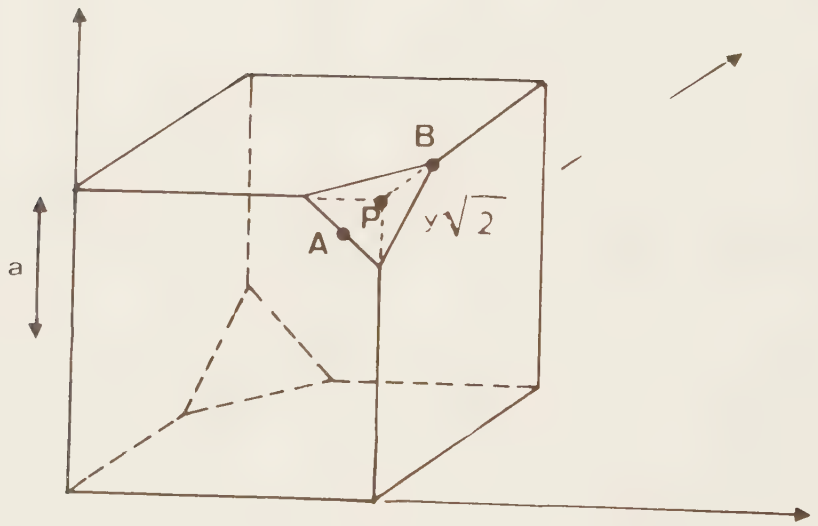
Les cavités se projettent généralement dans les plans du type (100) du cristal selon des carrés, dont certains sommets apparaissent tronqués dans une direction [110] (fig. 6). Ces cavités sont donc des cubes dont les faces sont parallèles aux plans du type (100) et dont certains sommets

$T°_c$		(A) FLUX : 2.10^{14} n/cm²/sec DOSE : 4.10^{20} n/cm²			(B) FLUX : 2.10^{13} n/cm²/sec DOSE : 4.10^{19} n/cm²		(C) FLUX : 2.10^{14} n/cm²/sec DOSE : 4.10^{21} n/cm²	(D) FLUX : 2.10^{13} n/cm²/sec DOSE : 4.10^{20} n/cm²			(E) FLUX : 5.10^{13} n/cm²/sec DOSE : 4.10^{20} n/cm²
	$\frac{\Delta V}{V}$ en %	0,2									0,7
	Nombre de cavités par cm^3	$2,5.10^{16}$									$5,8.10^{15}$
550											
$=0,30T_F$	taille moyenne en Å	40									100
	Nombre de dislocations par cm^2	10^{10}									10^{10}
	$\frac{\Delta V}{V}$ en %	0,45	0,05	0,5			1,8	1,15	1	0,25	0,7
	Nombre de cavités par cm^3	2.10^{16}	$0,55.10^{16}$	$2,3.10^{16}$			10.10^{16}	$1,8.10^{15}$	3.10^{15}	$0,8.10^{15}$	$2,8.10^{15}$
600											
$=0,32T_F$	taille moyenne en Å	60	45	60	<25Å	<25Å	55	175	140	140	135
	Nombre de dislocations par cm^2	2.10^{10}	inhomogène		2.10^{10}	$2,5.10^{10}$	$0,5.10^{10}$	2.10^{10}	inhomogène		$0,4.10^{10}$
		RECUIT	ECROUI		RECUIT	ECROUI	RECUIT	RECUIT	ECROUI		RECUIT

TABLEAU 1



plan du cliche : (100)



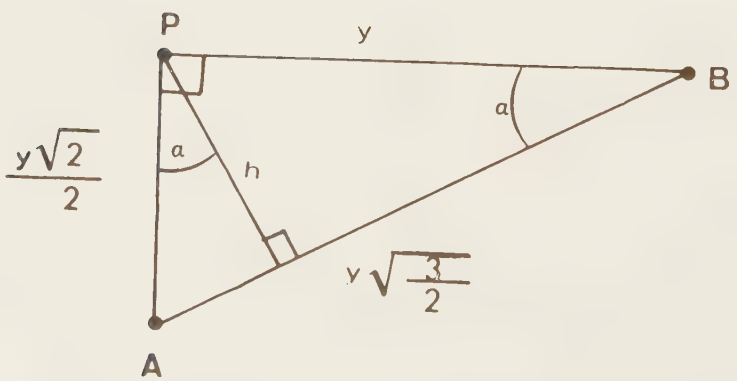


Fig 6

sont tronqués par des plans du type (111) (fig. 6).

Par le calcul, on montre que l'on peut négliger la variation de volume due à ces troncatures.

En effet si P est un point situé sur le sommet du cube

BA une médiane du triangle équilatéral, surface de base de la pyramide tronquée

et si $y = PB$

a = demi côté du cube

le volume tronqué V sur un sommet est égal à :

$$V = \frac{y^3}{6}$$

Si les 8 sommets du cube sont tronqués, ce qui n'a jamais été observé, la variation affectant le volume est égale à :

$$\Delta V = \frac{8y^3}{6}$$

Le volume V_o du cube étant égal à $8a^3$, on peut écrire :

$$V_o - \Delta V = 8a^3 \left(1 - \frac{y^3}{6a^3}\right)$$

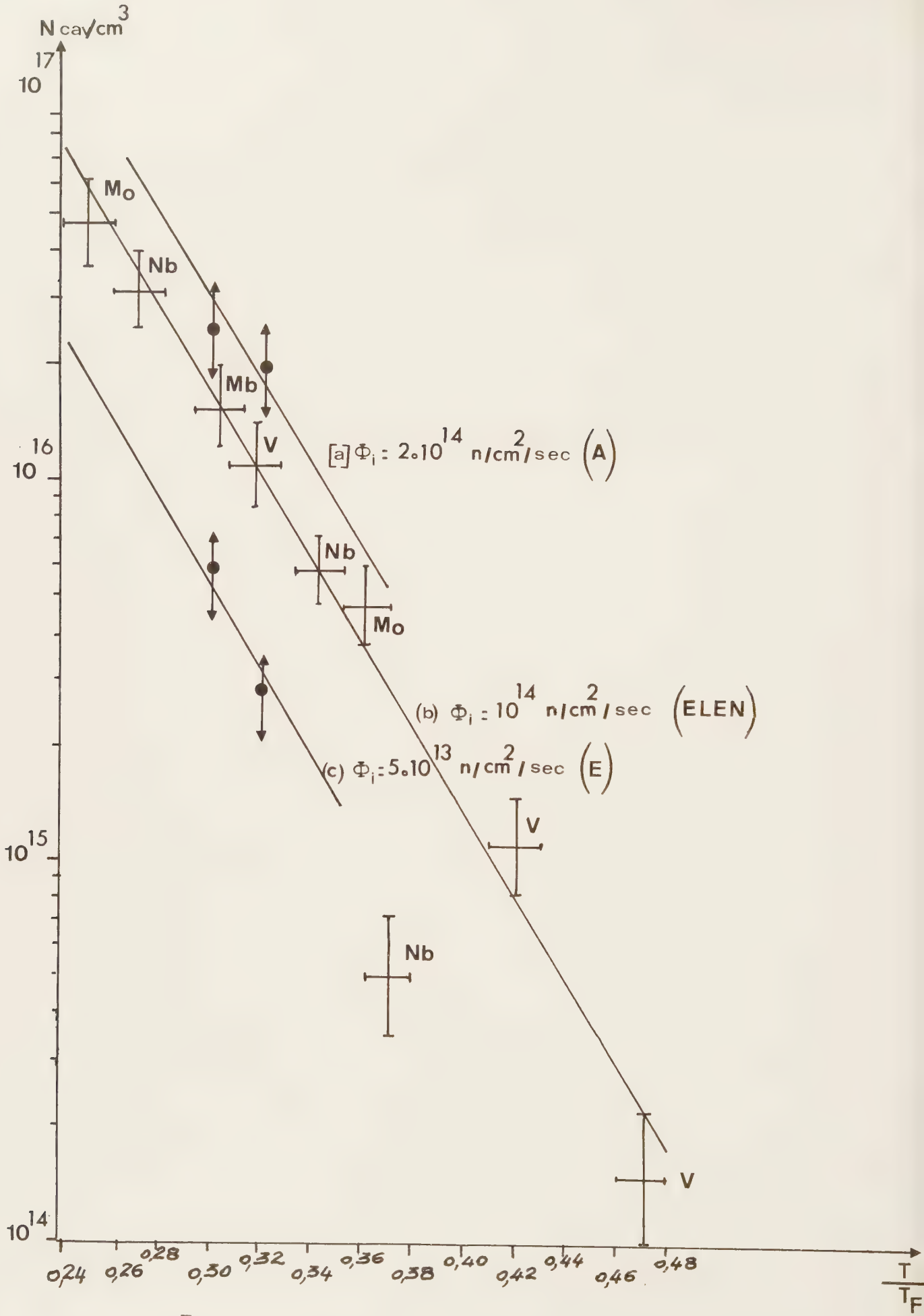
Pour $\frac{y}{a} = \frac{1}{2}$, valeur qui semble correspondre à la réalité, la correction à apporter est de l'ordre de $\frac{1}{50}$ dans le cas le plus défavorable. Nous la négligerons donc et le volume des cavités sera pris égal à $8\ a^3$.

IV.2.2.- Loi de nucléation

Nous avons utilisé la loi de germination empirique proposée par GOMOLINSKI et BEEBEC [12] déjà définie par l'équation (1):

$$N = \alpha\ t^n\ e^{-\beta \frac{T}{T_F}}$$

α est un paramètre lié au flux instantané de neutrons, alors que n et β caractérisent l'influence du temps d'irradiation t et de la température d'irradiation T.



Log N= f($\frac{T}{T_F}$) à ϕ_i constant : (a) pour Nb : irradiation A
(b) pour Nb , Mo, V : (ELEN)
(c) pour Nb : irradiation E

Fig 7

A partir de nos résultats expérimentaux obtenus pour le Niobium, recuit, nous avons tenté d'ajuster ces paramètres.

IV.2.2.a. - Dépendance en température

ELEN [23] a établi ce type de dépendance en température en $e^{-\beta \frac{T}{T_F}}$ pour Nb, Mo et V dans le cas d'une irradiation aux neutrons à une dose d'environ $4.10^{20} n/cm^2$ qui est sensiblement la même que celle de nos irradiations (A) et (E) (tableau 1). Sa conclusion est que pour ces trois métaux, la courbe $\text{Log } N = f\left(\frac{T}{T_F}\right)$ est une droite de pente $-\beta = -25$ (fig. 7).

Les résultats que nous ont fournis nos irradiations (A) et (E) à $T = 0,30$ et $0,32$ permettent de constater (fig. 7) que pour chacune de ces irradiations, nos deux points s'alignent sur une droite sensiblement parallèle à celle d'ELEN, ce qui nous permet d'adopter la valeur de β qu'il a avancée : Nous prendrons donc $\beta = 25$.

On peut noter, selon les résultats d'ELEN, que le point concernant le Niobium irradié à $0,37\ T_F$ est situé en dessous de la droite qu'il propose.

IV.2.2.b. - Dépendance en $\dot{t}$

Si l'on suppose que la valeur de β n'est pas trop affectée par des variations de la dose de neutrons, pour déterminer n, il nous faut comparer les résultats obtenus à température d'irradiation égale, au cours de deux irradiations dont le flux instantané de neutrons est le même (α constant). Les irradiations (A) et (C) à $0,32\ T_F$ obéissent à ces exigences.

On constate, d'après les résultats qu'elles ont apportés (tableau 1), que la densité de cavités est multipliée par 5, lorsque le temps d'irradiation est dix fois plus élevé. Nous sommes donc amenés à prendre pour n une valeur qui satisfasse à :

$$10^{n} = 5$$

soit $\boxed{n = 0,70}$

IV.2.2.c. Dépendance en flux instantané ϕ_i à t constant

En postulant que α est de la forme $(\phi_i)^m$, nous sommes en mesure de déterminer m, grâce par exemple aux irradiations (C) et (D) au cours desquelles le flux a varié d'un facteur 10, le temps d'irradiation étant constant ; le rapport des densités de cavités résultant de ces irradiations à 0,32 T_F est égal à 55,5 (tableau I), ce qui permet d'écrire :

$$10^m = 55,5$$

soit $\boxed{m = 1,74}$

La loi de nucléation des cavités est donc, pour le niobium, de la forme :

$$N = (K \phi_i)^{1,74} + 0,70\ e^{-25 \frac{T}{T_F}}$$

K est un coefficient de normalisation qui dépend des unités choisies. Si l'on exprime le flux ϕ_i en neutrons par cm^2 par seconde, et le temps t en secondes, on peut déterminer K à partir de nos résultats expérimentaux. Par exemple, au cours de l'irradiation (A), à $\frac{T}{T_F} = 0,30$, environ 3.10^{16} cavités par cm^3 se sont formées (fig. 7).

On peut donc écrire

$$3.10^{16} = (K \phi_i)^{1,74} + 0,70\ e^{-(25 \times 0,30)}$$

avec $\phi_i = 2.10^{14}$ neutrons / cm^2 / sec

$t = 2.10^6$ sec.

ce qui donne :

$$K \phi_i = 6,3.10^8$$

soit

$$K = \frac{1}{3,18.10^5}$$

La loi de germination des cavités pour le Niobium irradié que nous avons étudié est par conséquent :

$$N_{cav/cm^3} = \left(\frac{\phi_i \ n/cm^2/sec}{3,18.10^5}\right) 1,74 \ t_{sec.}^{0,70} \ e^{-25 \frac{T}{T_F}}$$

(6) soit $$N_{cav/cm^3} = \frac{(\phi_i \ n/cm^2/sec)}{3,67.10^9} \ 1,74 \ t_{sec}^{0,70} \ e^{-25 \frac{T}{T_F}}$$

Remarque : Cette loi s'écrit aussi approximativement sous la forme

$$N = \frac{1}{3,67.10^9} \phi_i \times (\phi_i \times t)^{0,70} \ e^{-25 \frac{T}{T_F}}$$

donc $$N = \frac{1}{3,67.10^9} \phi_i \ n/cm^2/sec \ \phi_t \ n/cm^2 \ e^{-25 \frac{T}{T_F}}$$

où ϕ_t est la dose totale de neutrons.

A dose totale constante, le nombre de cavités est donc proportionnel au flux instantané de neutrons.

Précisions obtenues sur la valeur des différents paramètres

a) sur β :

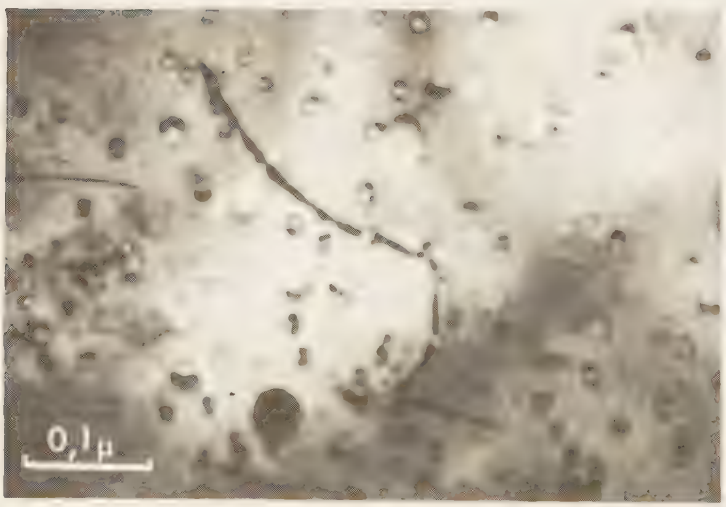
Nous avons repris la valeur de β proposée par ELEN qui semble en assez bon accord avec nos résultats expérimentaux. Nos deux points étant très rapprochés sur chacune des deux droites, nous n'avons pas pu faire une mesure précise de β.

b) sur n :

A partir de la précision sur la valeur des densités de cavités mesurées à la suite des irradiations (A) et (C) à 0,32 T_F on trouve :

$$0,48 < n < 0,92$$

(a)



(b)

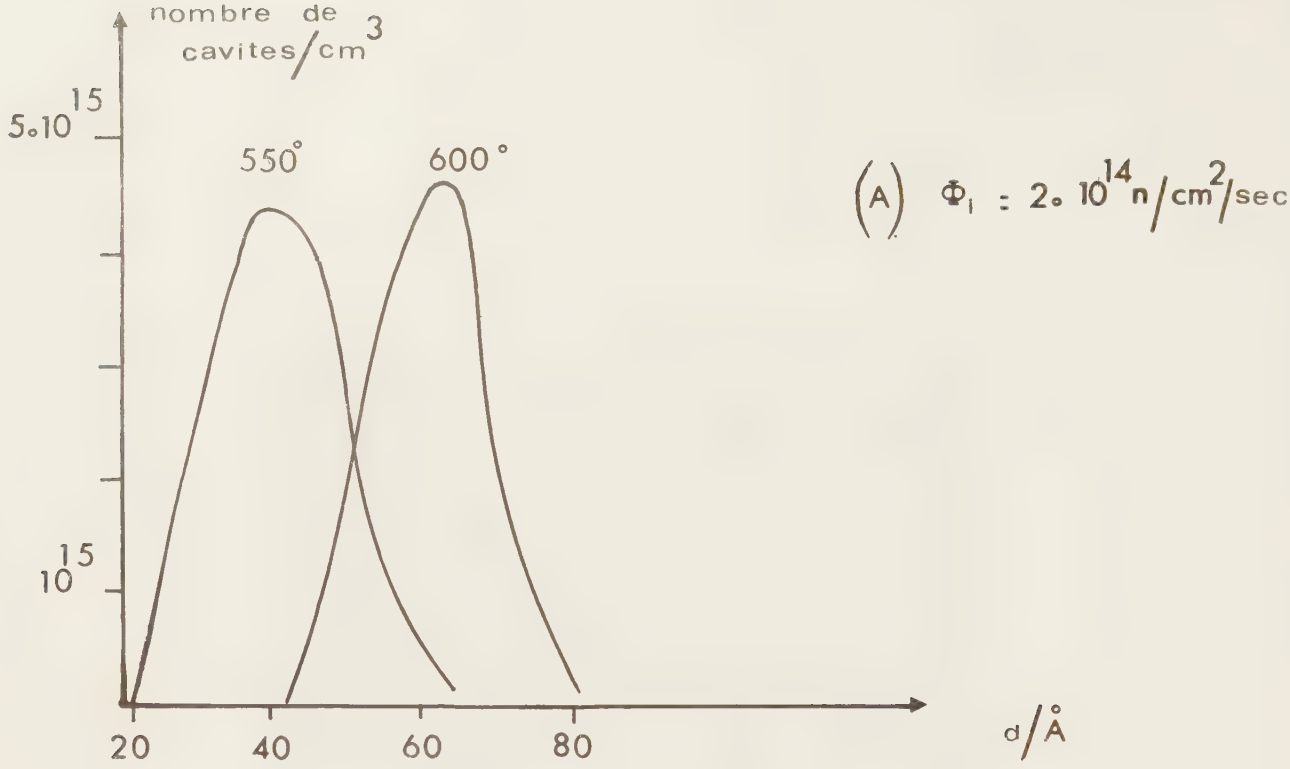
Effet de la température d'irradiation sur la taille et la densité des cavités :

$\phi_i = 5.10^{13}$ n/cm^2/sec

(a) T = 550°C

(b) T = 600°C

Fig. 8


nombre de cavites/cm3
5.10^15
10^15
550°
600°
20
40
60
80
d/Å
(A) Φi : 2. 10^14 n/cm2/sec

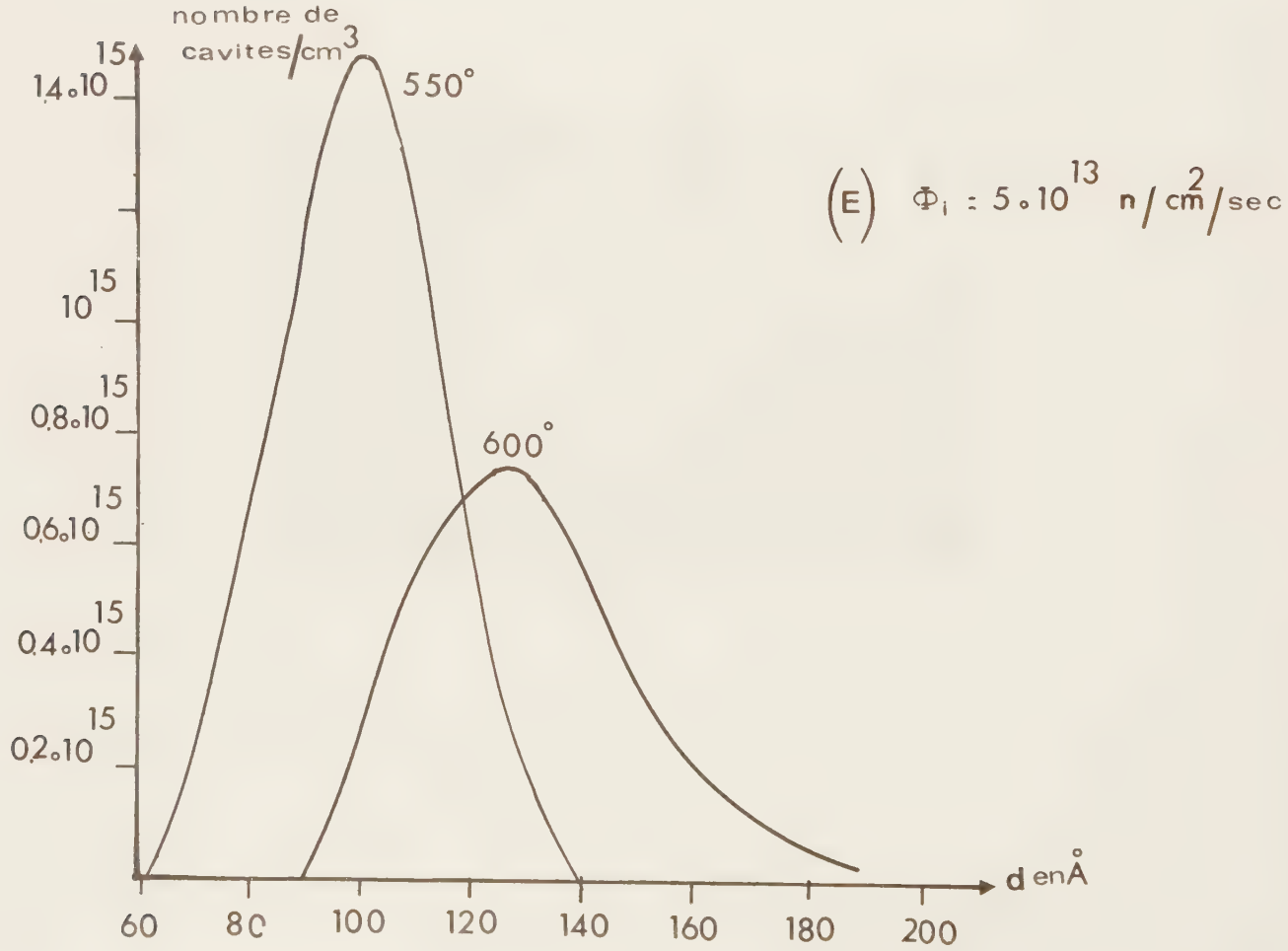

nombre de cavites/cm3
1,4.10^15
10^15
0,8.10^15
0,6.10^15
0,4.10^15
0,2.10^15
550°
600°
60
80
100
120
140
160
180
200
d en Å
(E) Φi : 5.10^13 n/cm2/sec

Fig 9

c) sur m :

On trouve, de la même façon, que l'erreur commise sur la détermination des densités de cavités résultant des irradiations (C) et (D) à 0,32 T_F entraîne :

$$1,52 < m < 1,96$$

d) sur le coefficient de normalisation $K' = (K)^{1,74} = \frac{1}{3,67.10^9}$

L'imprécision sur la valeur de la densité de cavités mesurée à l'issue de l'irradiation (A) à 0,30 T_F entraîne :

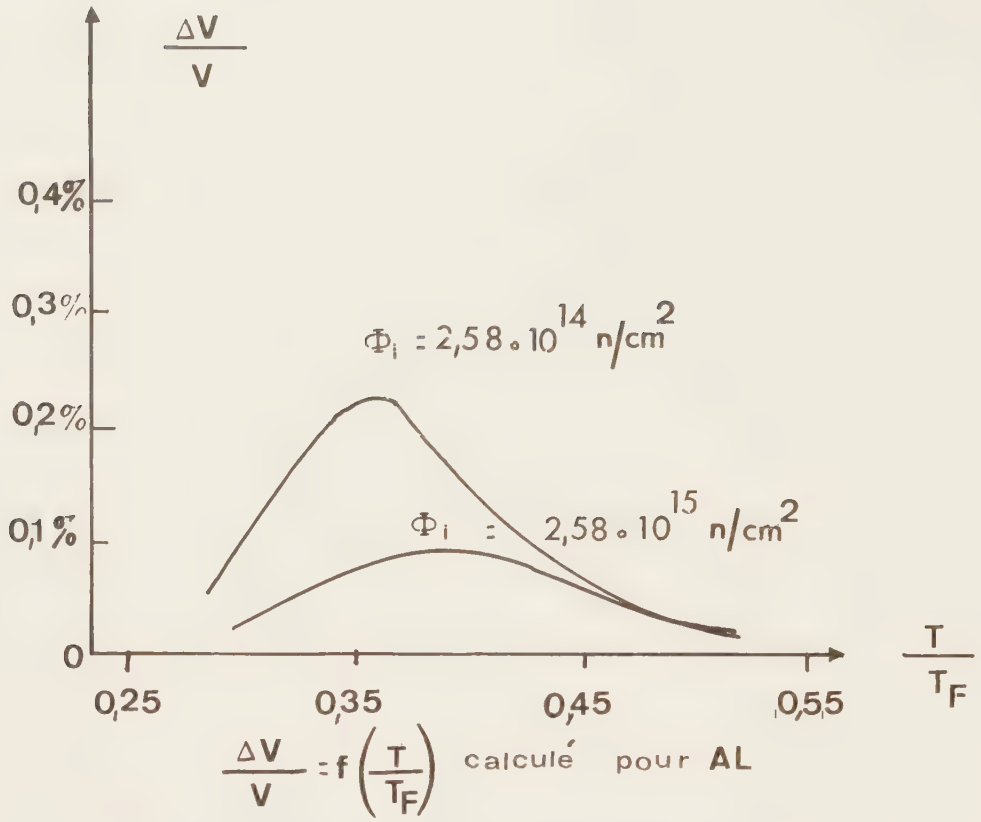
$$\frac{1}{6.10^9} < K' < \frac{1}{3,16.10^9}$$

IV.2.3. - Influence de la température d'irradiation sur les phénomènes observés

IV.2.3.a.- Sur la taille et la densité des cavités

Dans la plupart des métaux, une élévation de la température d'irradiation fait augmenter la dimension des cavités et diminuer leur densité. Nous avons constaté ces mêmes effets en ce qui concerne le Niobium recuit, à l'issue des irradiations (A) et (E) effectuées à $\frac{T}{T_F} = 0,30$ et $\frac{T}{T_F} = 0,32$ (tableau 1) (fig. 8). L'histogramme des cavités (nombre de cavités en fonction de leur taille d) est un pic qui se décale vers les valeurs supérieures de d lorsque la température d'irradiation s'élève (fig. 9).

On peut interpréter ceci en considérant que la mobilité des lacunes s'accroît lorsque la température augmente ; celles-ci ont donc tendance à venir s'annihiler dans les cavités déjà présentes, plutôt qu'à en faire grossir de nouvelles.



densite de dislocation: $L = 10^{10}$ disl/cm^2

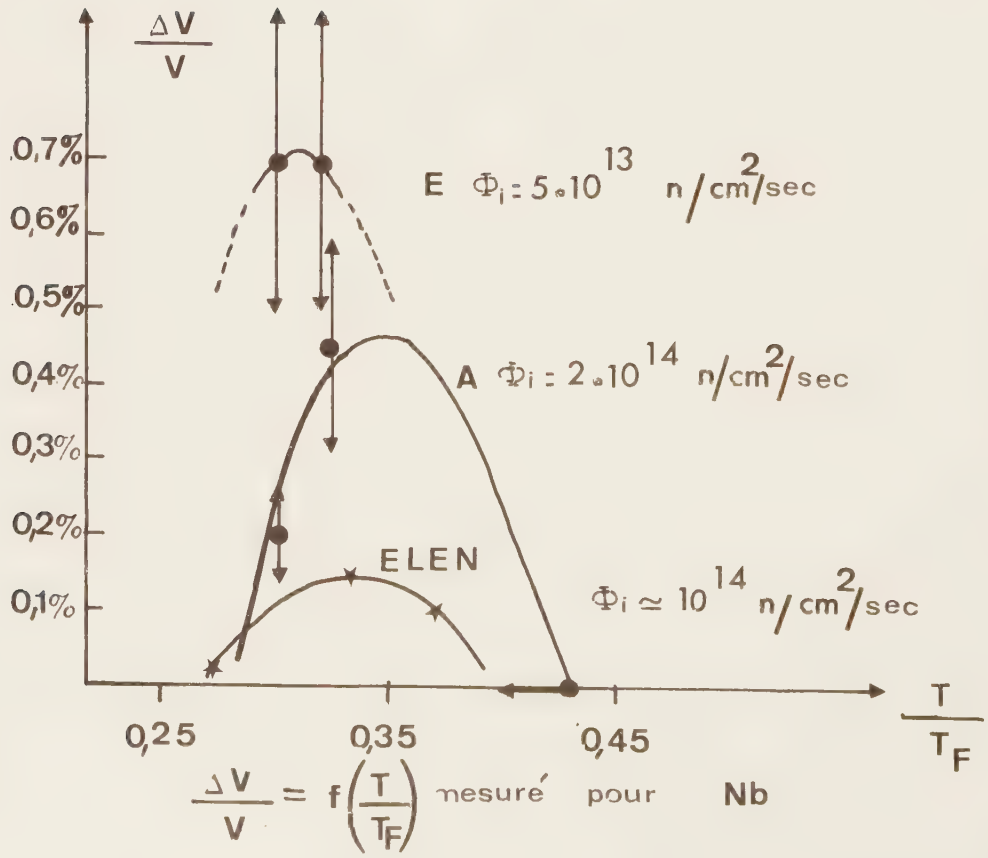


Fig 10

IV.2.3.b.- Sur la valeur du gonflement -

Le modèle théorique de GOMOLINSKI et EFEBEC [12], prévoit que le gonflement, calculé pour Al, Cu et Mg décrit un pic à l'intérieur du domaine de température au sein duquel il se manifeste (0,25 T_F à 0,55 T_F). La forme de ce pic est, dans ces trois métaux, peu affectée par les différentes valeurs du coefficient β choisies pour la loi de nucléation (β=16,88 pour Al ; β=28,75 pour Cu ; β=24,708 pour Mg) ; elle dépend par contre beaucoup de la densité de dislocations que l'on se donne. Nous avons reporté (fig. 10) le pic de gonflement calculé dans le cas de l'aluminium pour une densité de dislocations égale à 10^{10} dislocations/cm^2, valeur assez proche de celle que l'on a observée dans nos échantillons de Niobium.

En ce qui concerne le Niobium, les pics de gonflement relatifs aux résultats d'ELEN [23] et de l'irradiation (A) sont aussi représentés sur la figure 10. Nous avons pour cela ajouté aux valeurs de $\frac{\Delta V}{V}$, que nous avons mesurés à 0,30 T_F et 0,32 T_F (tableau 1) le résultat de cette irradiation effectuée à 0,43 T_F (900°C). Pour cette température, nous n'avons observé aucune cavité dans le Niobium, le gonflement est donc nul.

On constate (fig. 10) que par rapport au pic de gonflement calculé dans Al, celui du niobium est très étroit, et qu'en particulier il décroit rapidement vers les valeurs supérieures de $\frac{T}{T_F}$. Pour $\frac{T}{T_F} > 0{,}43$, le gonflement du Niobium est nul, ce qui n'est pas le cas pour Al et pour la plupart des métaux [24]. Ceci laisse donc présager d'un comportement anormal du niobium vis à vis du gonflement vers les hautes températures, sur lequel nous reviendrons ultérieurement.

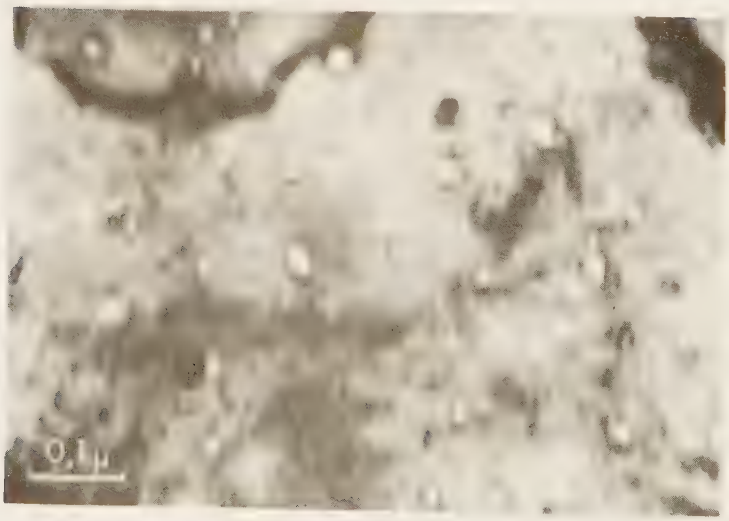
IV.2.4.- Effet du flux instantané à fluence constante

IV.2.4.a. - Sur la densité et la taille des cavités

Les irradiations (A) (D) et (E) effectuées à dose constante ont permis de mettre en évidence une forte influence du flux instantané sur le nombre et la dimension des cavités dans le Niobium recuit (tableau 1). Lorsque le flux s'abaisse, la taille des cavités augmente et leur densité diminue (fig. 11).

(a) : $\phi_i = 2.10^{14}$ n/cm^2/sec

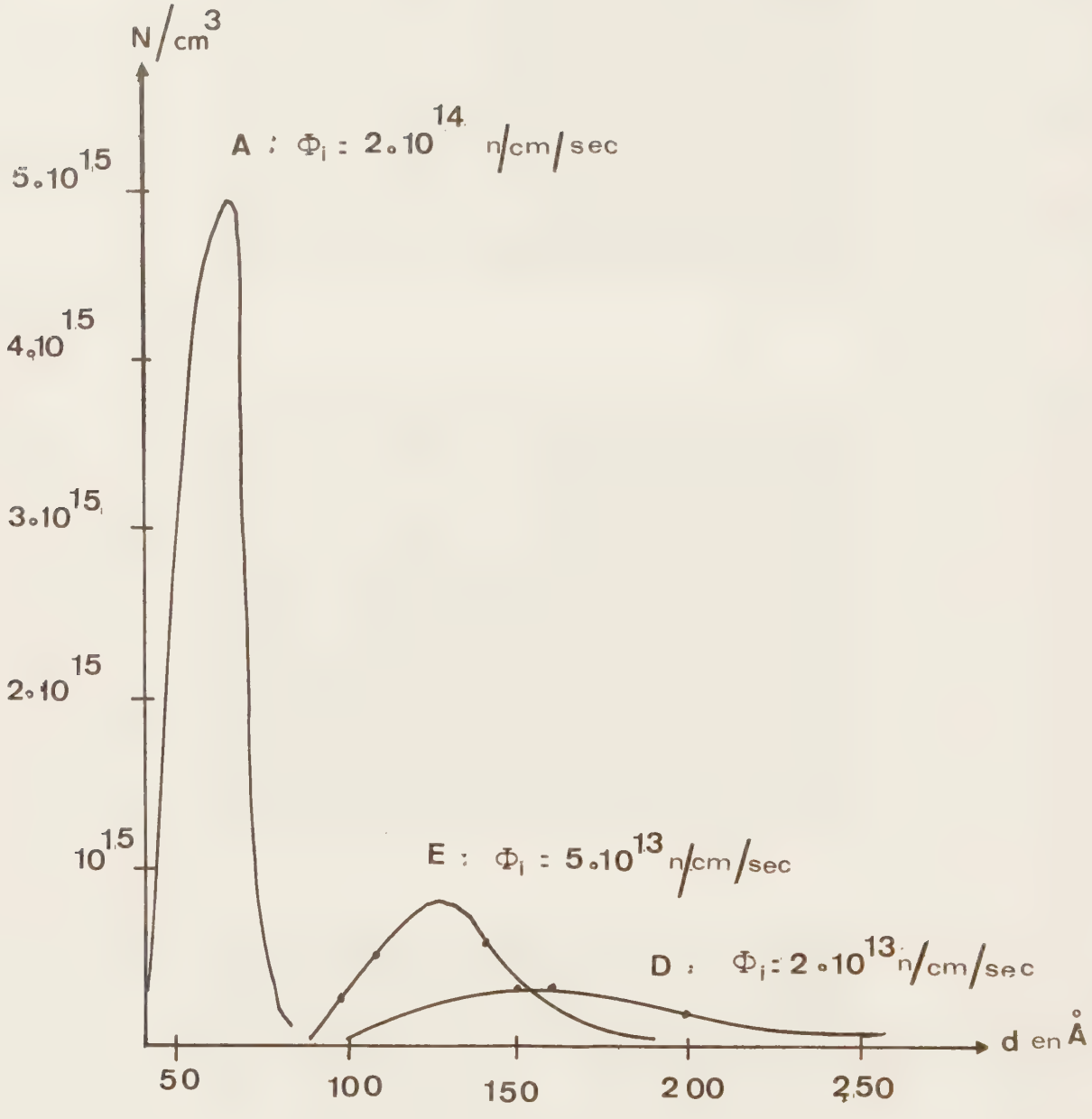
(b) : $\phi_i = 5.10^{13}$ n/cm^2/sec



(c) : $\phi_i = 2.10^{13}$ n/cm^2/sec

Effet du flux instantané sur la densité et la taille des cavités

Fig. 11



Effet du flux instantané sur la répartition en taille des cavités.

Fig 12

Cet effet de flux instantané est apparent sur la figure 7 où l'on note que les droites Log N = f $(\frac{T}{T_F})$ sont décalées vers le bas lorsque le flux décroit : la droite tracée par FELEN [23] pour un flux de l'ordre de 10^{14} n/cm^2/sec est encadrée par nos deux droites résultant des irradiations (A) et (E) au cours desquelles le flux était respectivement de 2.10^{14} n/cm^2/sec et 5.10^{13} n/cm^2/sec (Tableau 1).

La figure 12 rend compte de l'influence du flux instantané sur la répartition en taille des cavités, observée à l'issue des irradiations (A) (D) et (E) pour une température d'irradiation de 0,32 T_F.

Ces différents effets peuvent être compris si l'on considère l'équation (5) concernant la croissance des cavités. La vitesse de croissance d'une cavité de rayon R est égale à :

$$\frac{dV}{dt} = 4 \pi R \Omega \left[D_I C_I - D_i C_i - D_I C_{Io} e^{\frac{2\Gamma\Omega}{RkT}}\right]$$

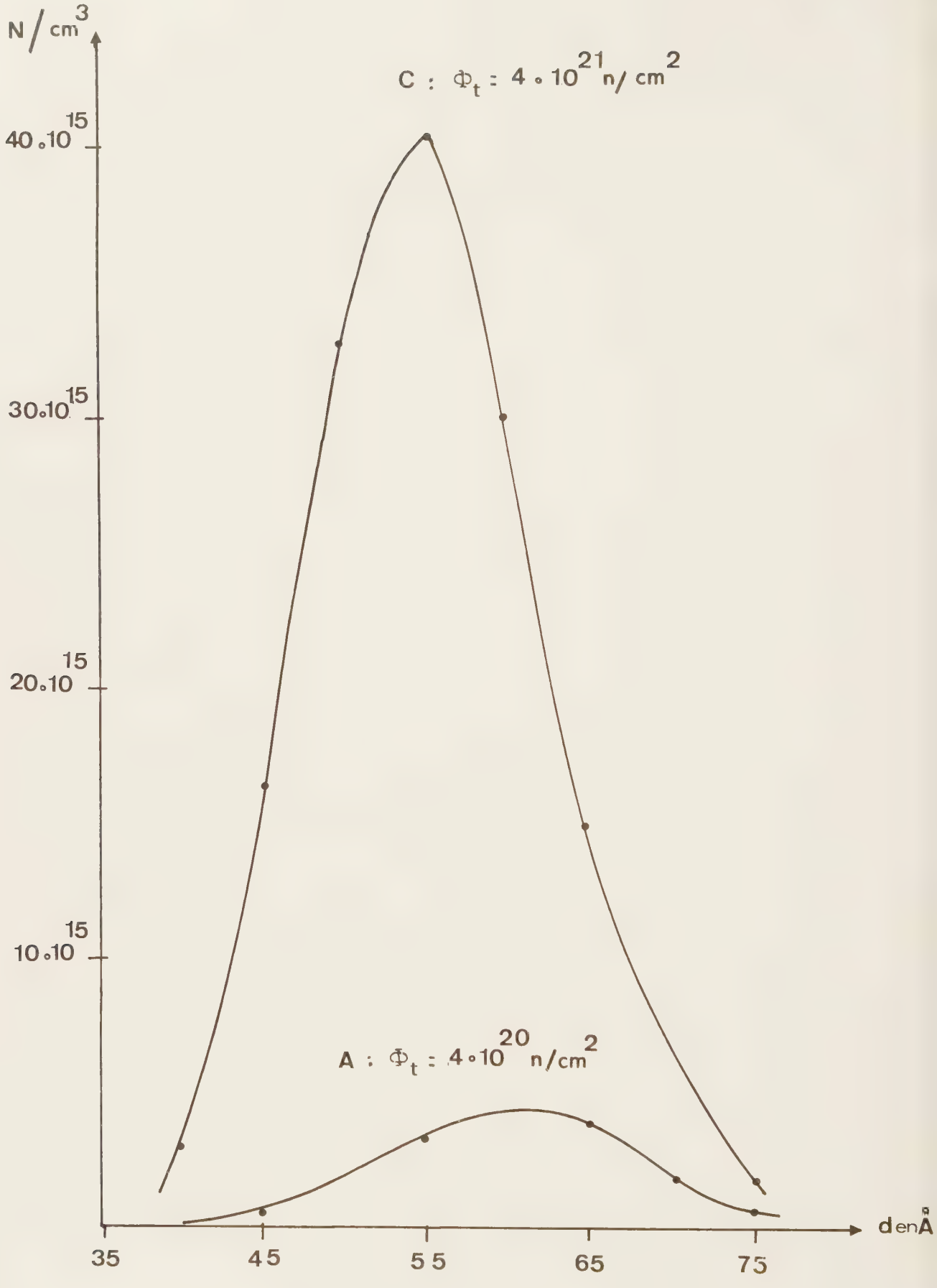
La cavité croit si $\frac{dV}{dt} > o$, ou est en équilibre si $\frac{dV}{dt} = o$; Par contre, si $\frac{dV}{dt} < o$, elle disparait. Par conséquent, la condition $\frac{dV}{dt} = o$ définit un rayon critique R_c, fonction de C_I et C_i, en dessous duquel une cavité ne peut être stable.

Ce rayon critique R_c est donc donné par :

$$D_I C_I - D_i C_i - D_I C_{Io} e^{\frac{2\Gamma\Omega}{R_c kT}} = o$$

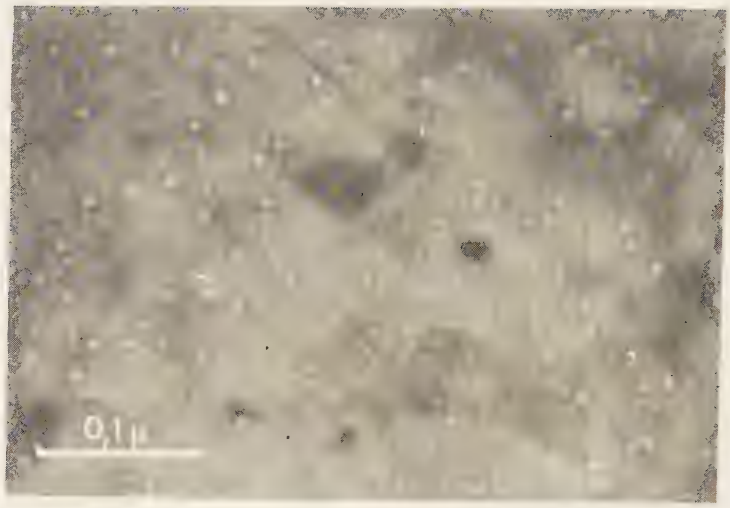
soit $$\text{Log} \frac{D_I C_I - D_i C_i}{D_I C_{Io}} = \frac{2\Gamma\Omega}{R_c kT}$$

d'où $$R_c = \frac{2\Gamma\Omega}{kT} \times \frac{1}{\text{Log} \frac{D_I C_I - D_i C_i}{D_I C_{Io}}} \qquad (7)$$



Effet de la dose à flux constant sur la répartition en taille des cavités.

Fig 13



(a) : $\phi_t = 4.10^{20}$ n/cm^2

$\phi_i = 2.10^{14}$ n/cm^2/sec

(b) : $\phi_t = 4.10^{21}$ n/cm^2

$\phi_i = 2.10^{14}$ n/cm^2/sec

Effet de la dose à flux constant sur la densité et la taille des cavités.

Fig. 14

Or, lorsque le flux instantané diminue, la concentration C_i de lacunes présentes dans le métal pour participer à la croissance des cavités diminue également. Il en résulte que le rayon critique de croissance des cavités R_c augmente, et comme seules les cavités dont le rayon R est supérieur à R_c peuvent croître, la densité de cavités est d'autant plus faible et leur taille d'autant plus élevée que le flux instantané est plus bas.

IV.2.4.b. Sur le pic de gonflement

A température d'irradiation constante (0,32 T_F) l'effet d'un abaissement du flux instantané sur la répartition des cavités fait croître la valeur du gonflement (tableau 1).

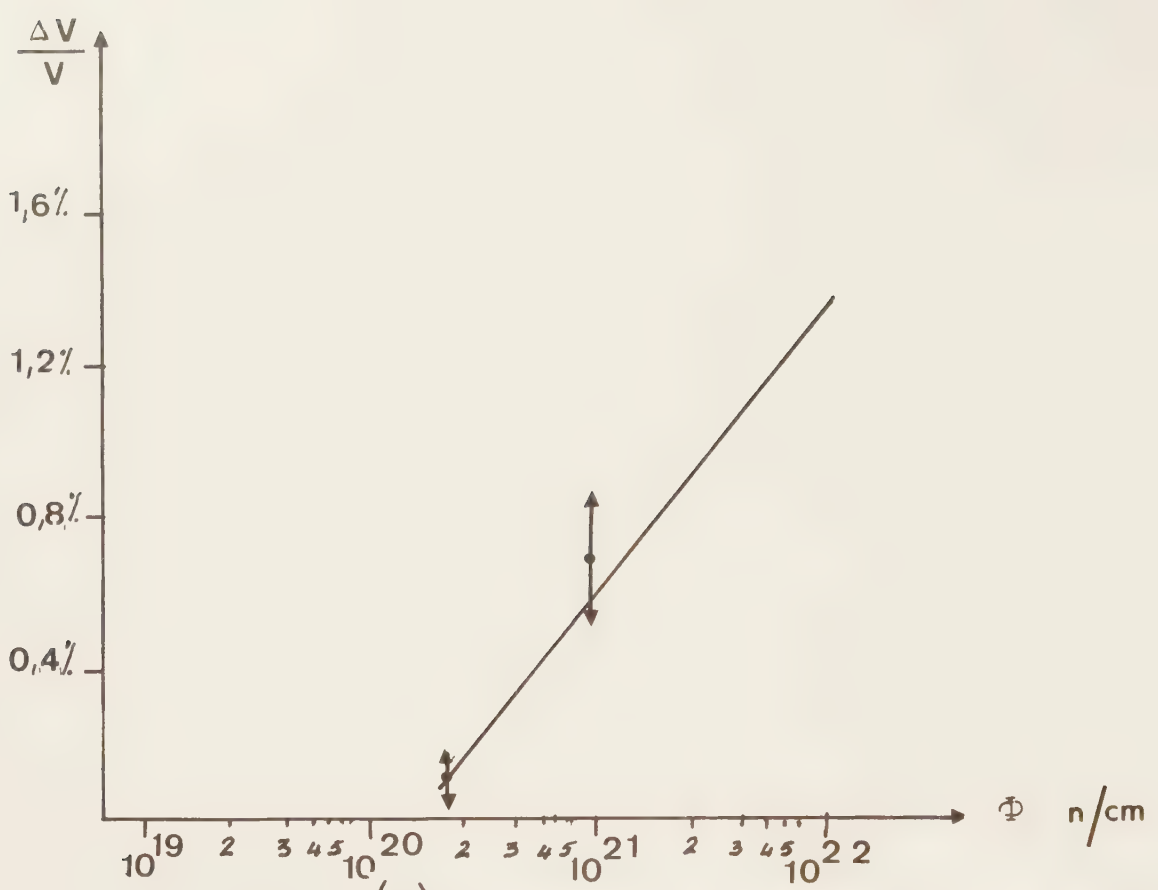
Les calculs effectués pour Al par GOMOLINSKI et DIERS [12] prévoient que lorsque le flux instantané augmente, le maximum du pic de gonflement est abaissé et décalé vers les hautes températures (fig. 10). On peut constater (fig. 10) que le comportement du Niobium au cours des irradiations (A) et (E) (tableau 1) est en bon accord avec le modèle théorique élaboré pour Al.

IV.2.5. - Effet de la dose à flux instantané constant

IV.2.5.a. Sur la répartition des cavités

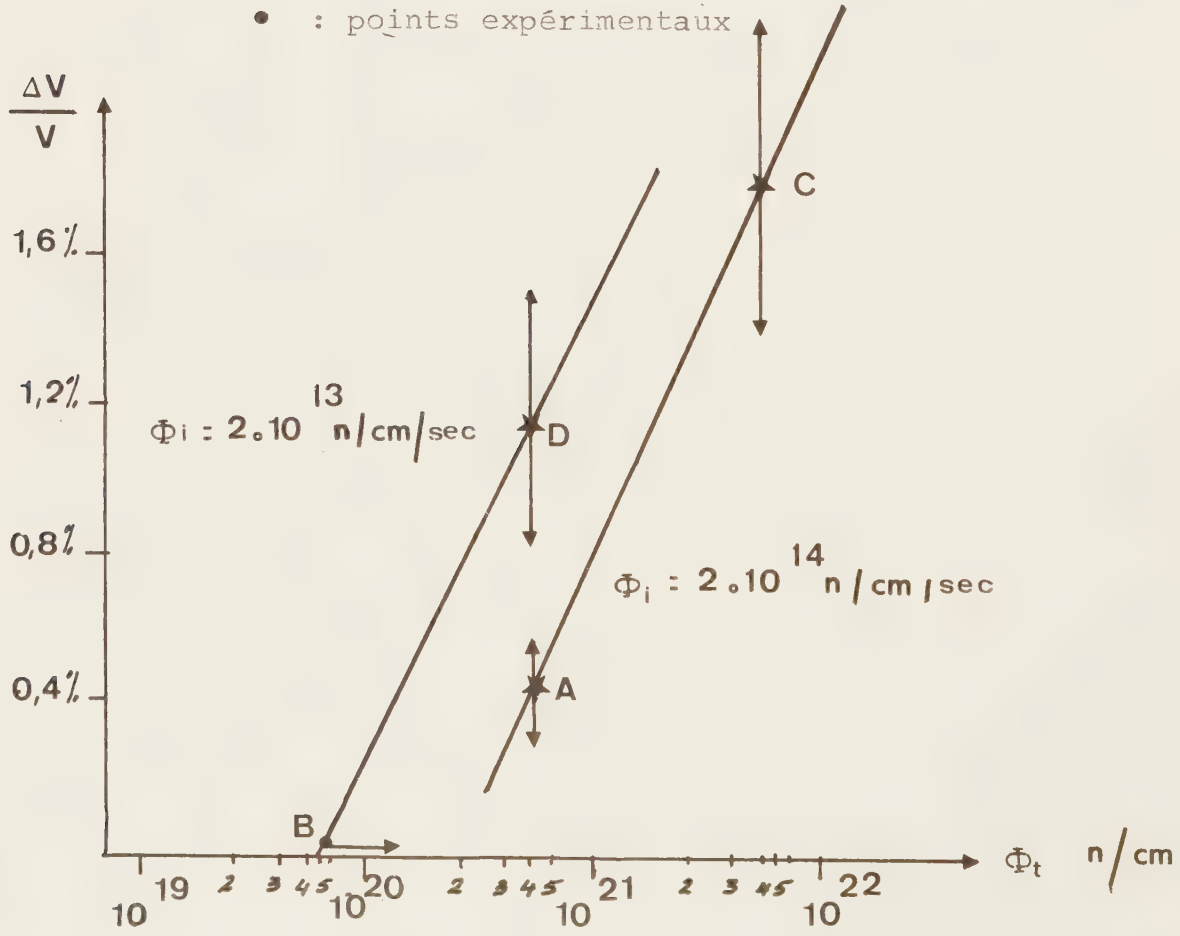
Entre les irradiations (A) et (C) (tableau 1), la dose de neutrons a varié d'un facteur 10, le flux restant le même. Pour une température d'irradiation égale à 0,32 T_F, nous remarquons (fig. 13) que le pic de répartition en taille n'est pas décalé vers les valeurs supérieures et que seule la densité de cavités a varié d'un facteur 5 (tableau 1- fig. 14) ; on note même un léger décalage vers les dimensions inférieures lorsque la dose est plus élevée (fig. 13).

Cette constatation a de quoi surprendre car lorsque le temps d'irradiation augmente, on s'attend à ce que les cavités déjà présentes grossissent au détriment de la nucléation de nouvelles cavités ; en effet, au cours de l'irradiation, le nombre de puits à lacunes que sont les cavités augmentant, la concentration C_i diminue, donc la valeur du rayon critique de croissance R_c s'élève (équation (7) p.28).



$\frac{\Delta V}{V} = f(\phi_t)$ calculé dans Al à $0,35 T_F$ pour $\phi_i = 10^{14}$ n/cm²/se

• : points expérimentaux



$\frac{\Delta V}{V} = f(\phi_t)$ mesuré dans Nb

Fig 15

L'absence de cet effet prouve qu'au cours de l'irradiation (C) du Niobium, c'est-à-dire, pour un temps d'irradiation dix fois plus élevé qu'au cours de l'irradiation (A) (tableau 1), le rayon critique R_c est resté petit. On peut dès lors suspecter les impuretés gazeuses qui, comme nous l'avons déjà noté (p.19) sont facilement absorbées par le Niobium.

Lorsqu'une cavité est remplie d'un gaz, si p est la pression de ce gaz à l'intérieur de la cavité, la concentration d'équilibre des lacunes à la surface cette cavité devient [14] :

$$C_{oc} = C_{lo} \exp \left[\frac{2\Gamma\Omega}{RkT} - \frac{p\Omega}{kT} \right]$$

L'équation (7) donnant le rayon critique R_c devient :

(8)
$$R_c = 2\Gamma\Omega \times \frac{1}{kT \operatorname{Log} \dfrac{D_l C_l - D_i C_i}{D_l C_{lo}} + p\Omega}$$

On remarque, d'après (8) qu'à concentration C_l de lacunes égale , la valeur du rayon critique est abaissée par la présence du gaz qui favorise par conséquent la nucléation des cavités.

L'avidité qu'éprouve le Niobium pour les impuretés gazeuses, pourrait donc être responsable de ce phénomène.

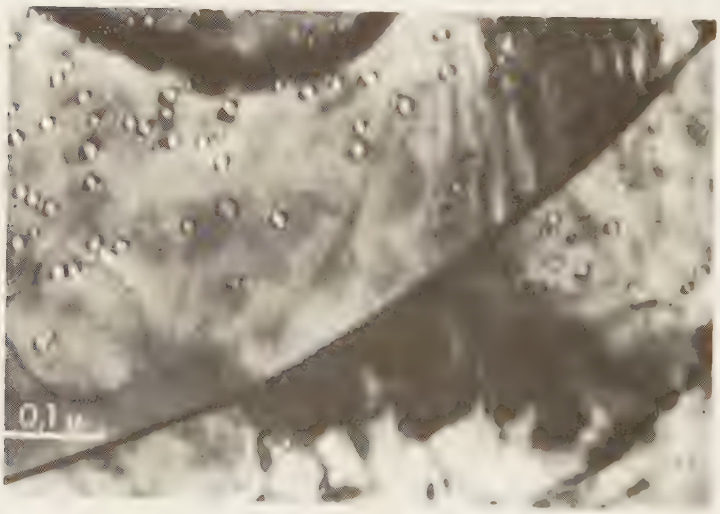
IV.2.5.b. - Sur la valeur du gonflement

La figure 15 rend compte des prévisions du modèle théorique de GOMOLINSKI et BREBEC [12] pour une irradiation de l'aluminium à une température de 0,35 T_F et un flux de 10^{14} n./cm^2/sec, ainsi que des valeurs expérimentales correspondantes observées.

Au cours des irradiations (A) et (C) d'une part, et (B) et (D) d'autre part, du Niobium (tableau 1), pour un flux constant, la dose neutronique a varié d'un facteur 10 ; les résultats relatifs à ces irradiations effectuées à 0,32 T_F sont également portés sur la figure 15.

(a)

(b)



(c)

Cavités dans le Nb écroui

Fig. 16

Après une dose de neutrons de 4.10^{19} n/cm^2 (irradiation (B), aucune cavité n'est visible dans le niobium.

Nos deux droites, tracées à flux constant, sont sensiblement parallèles.

IV.2.6.- Effet de l'écrouissage

Afin d'étudier l'influence de l'écrouissage sur le gonflement, des échantillons bruts de laminage (donc très fortement écrouis) ont subi les irradiations (A) et (D) (tableau 1). Ces échantillons présentaient une structure cellulaire, chaque grain s'étendant sur quelques microns.

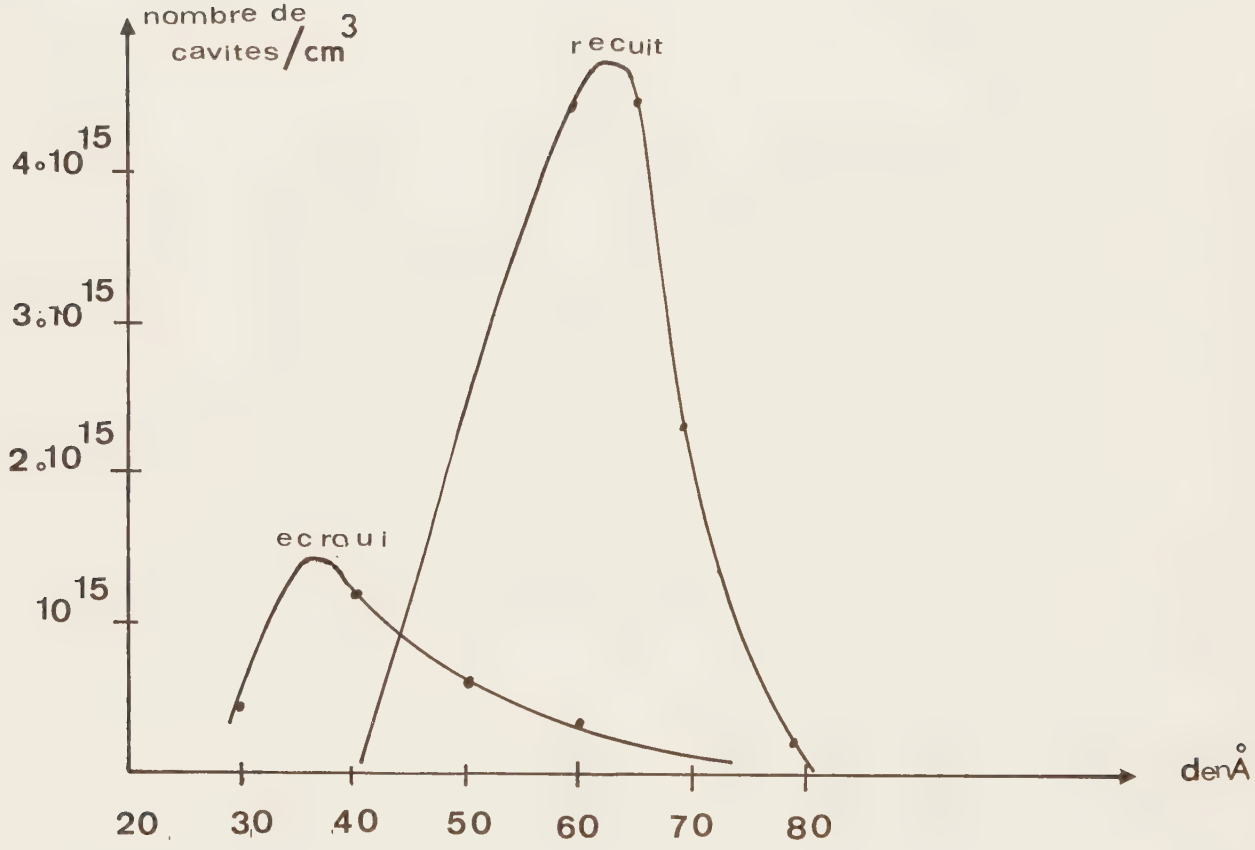
La répartition des dislocations à l'intérieur de ces lames était très inhomogène ; vers les frontières des cellules une densité de dislocations très élevée était en général présente (supérieure à 10^{11} disloc./cm^2)

Entre ces régions denses, quelques plages moins écrouies contenaient 10^{10} à 5.10^{10} dislocations par cm^2.

L'effet de l'écrouissage est difficile à interpréter car dans les échantillons recuits, la densité de dislocations était également importante par suite de difficultés de recuit : de 10^{10} disloc/cm^2 après recuit, elles passait à environ 2.10^{10} disloc/cm^2 à l'issue de l'irradiation.

Nous avons relevé dans les échantillons écrouis irradiés, des zones où les cavités sont réparties de façon assez homogène (figure 16 a) et d'autres sur lesquelles cette répartition est très inhomogène en densité comme en taille (figure 16 b). Ceci est sans doute dû à une variation locale de la densité de dislocations, donc de la sursaturation lacunaire disponible pour l'agglomération sous forme de cavités.

L'influence des joints de grains en tant que puits à lacunes est aussi à noter ; les régions voisines des joints sont dénudées de vides (figure 16 c).



Répartition en taille des cavités dans le Niobium irradié à 0,32 T_F

$\phi_i = 2.10^{14}$ n/cm^2/sec

$\phi_t = 4.10^{20}$ n/cm^2

Fig 17

A la suite de ces inhomogénéités dans la répartition en taille et en densité, le nombre moyen de cavités est plus faible dans les échantillons écrouis que dans le Niobium recuit, et les pics de répartition en taille s'élargissent (figure 17).

La valeur du gonflement varie beaucoup d'une plage à l'autre ; à titre indicatif, nous mentionnons dans le tableau 1, les résultats d'observations effectuées sur des sites différents à la suite des irradiations (A) et (D). Cette valeur est donc difficile à évaluer globalement.

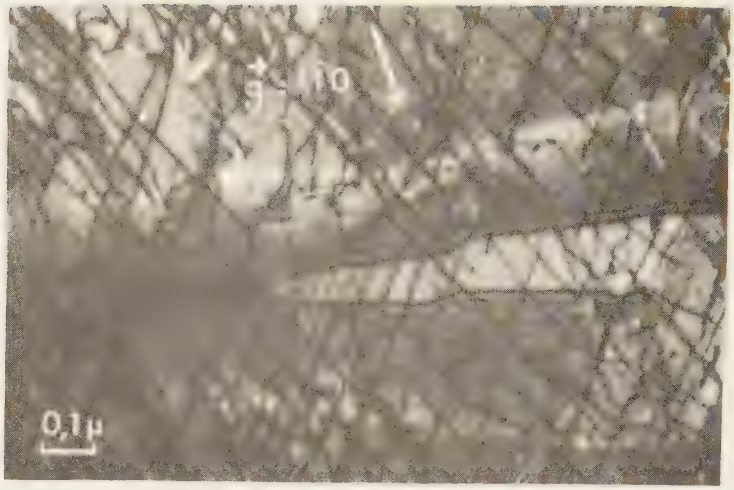
De toute cette discussion expérimentale, il faut donc retenir que le Niobium présente un pic de gonflement qui, en fonction de la température d'irradiation, est plus étroit que dans la plupart des autres métaux.

Alors que ce pic s'étend généralement entre 0,25 T_F et 0,55 T_F, dans le Niobium, la limite supérieure semble être de l'ordre de 0,40 T_F. Nous allons nous pencher sur ce comportement anormal vers les hautes températures.

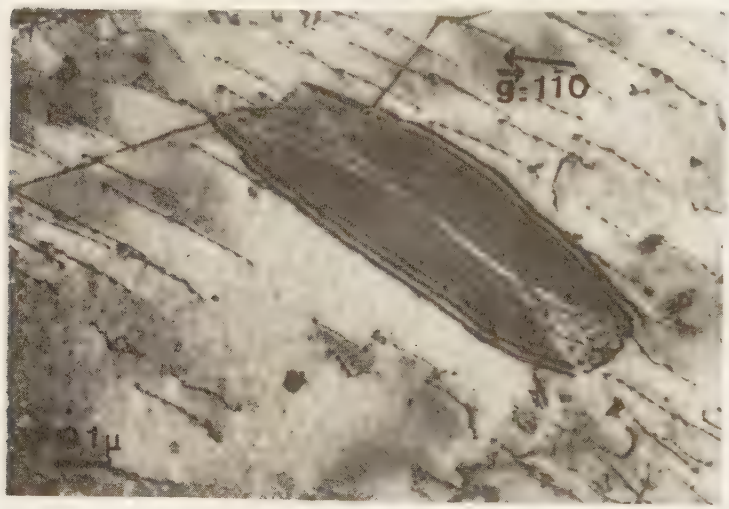
Cependant, à l'intérieur de ce domaine de gonflement, l'influence des divers paramètres d'irradiation est en bon accord, dans le Niobium, avec ce que l'on est en droit d'attendre à la suite des prévisions calculées à l'aide de différents modèles qui s'appuient sur la théorie de la diffusion des défauts.

IV.3. - Irradiation à haute température

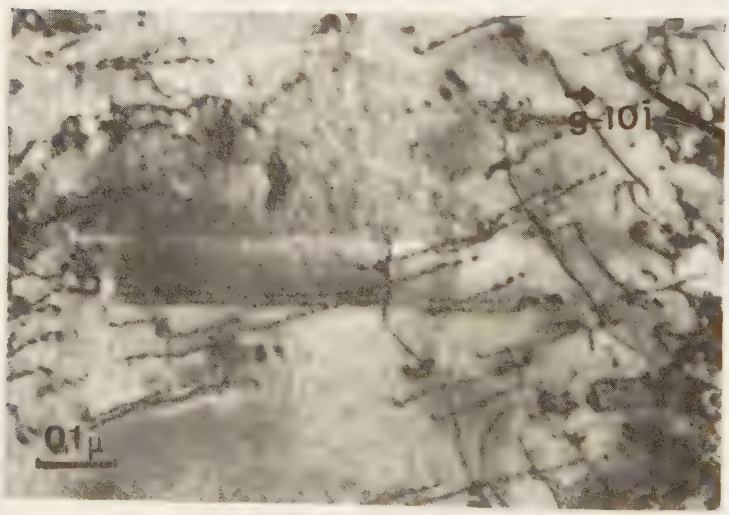
Dans les lames de Niobium irradiées à 800°C, 900°C, et 1200°C aucune cavité n'a été observée. Ces températures correspondent respectivement, pour le Niobium, à 0,39 T_F, 0,43 T_F et 0,53 T_F. Cette absence de gonflement constitue donc une anomalie par rapport à la majorité des autres métaux, du moins en ce qui concerne les deux plus basses températures d'irradiation précédemment citées.



800 °c



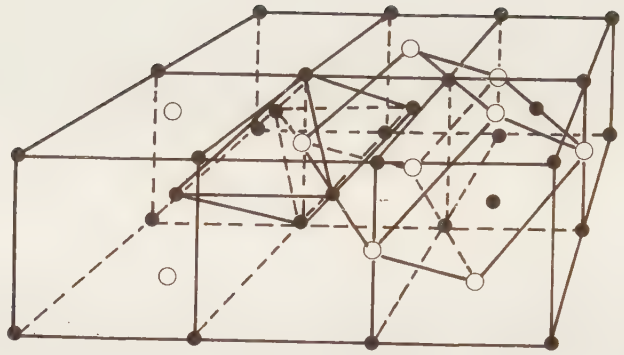
900 °c



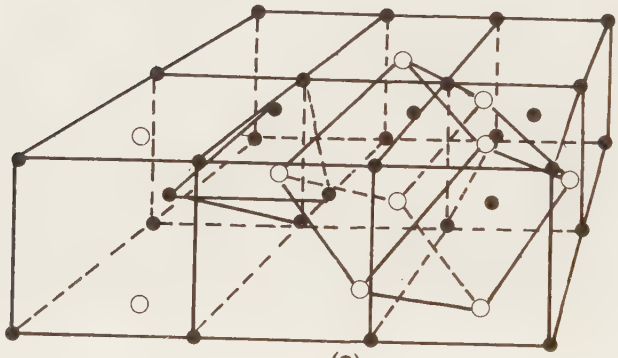
900 °c

Phénomènes de contraste observés dans le Niobium irradié à 800°C et 900°C.

Fig. 18



(1)



(2)

Représentation de la superstructure : ● atomes de Niobium

○ atomes d'impuretés

(1) les atomes d'impuretés occupent les sites octahédriques

(2) les atomes d'impuretés occupent les sites tétrahédriques

FIG. 18b

Nous avons par contre noté, dans ces échantillons, l'apparition de phénomènes de contraste qui peuvent faire penser à la présence de fautes d'empilement dans le métal (figure 18). Une analyse plus détaillée a cependant révélé que ces figures de contraste peuvent être attribuées à la mise en ordre d'impuretés en position interstitielle dans le réseau du métal.

IV.3.1.- Mise en ordre d'impuretés dans le Niobium

Lorsque l'on observe les diagrammes de diffraction sur une telle figure de contraste, on constate que certains spots se dédoublent. Ceci est surtout sensible pour les taches d'indice élevé ; dans un plan réciproque (110), le long de la direction $[\bar{1}10]$, on observe un dédoublement à partir de la tache d'indice $\bar{2}20$. Le vecteur joignant les deux composantes de chaque spot est parallèle à la direction [002] et en général perpendiculaire à la direction de la figure de contraste. De part et d'autre de celle-ci, les réseaux cristallins sont donc désorientés l'un par rapport à l'autre.

En outre, des taches supplémentaires sur les diagrammes de diffraction caractéristiques du Niobium sont présentes et indiquent que des atomes d'impuretés se sont mis en ordre dans le réseau ; dans le plan réciproque (110) ces taches de surstructure se situent dans les directions du type $[1\bar{1}2]$, exactement entre deux spots du réseau fondamental.

Dans un réseau cubique centré, deux types de sites peuvent être occupés par des atomes d'impuretés en position interstitielle ; les sites octahédriques $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0)$ et les sites tétrahédriques $(\frac{1}{2}, \frac{1}{4}, 0)$.

Nos observations sont consistantes avec celles de VAN LANDUYT, GEVERS et AMELINCKX [32], qui, après une analyse détaillée du même phénomène dans le Niobium proposent pour la surstructure une cellule primitive monoclinique P (fig. 18b) avec : $a_1 = a\sqrt{2}\,\sqrt{3}$

$$a_2 = a_3 = a\,\frac{\sqrt{3}}{2}$$

$$\beta = 70°32'$$

a étant le paramètre du réseau fondamental.

Si les atomes d'impuretés occupent les sites octahédriques, chacun de ces atomes se trouve au centre d'un octahèdre constitué à partir de six atomes de Niobium dont deux sont situés sur un côté du cube, les quatre autres étant au centre des quatre cubes adjacents à ce côté (fig.18b). L'atome d'impureté est placé au milieu du côté considéré qui est la plus petite diagonale de l'octahèdre. Il va donc causer une élongation du réseau fondamental le long de cette direction. Pour des raisons de symétrie, on a donc trois directions possibles de déformation dans ce cas, qui sont les directions des axes du cube.

Si au contraire ce sont les sites tétrahèdriques qui sont occupés, chaque atome d'impureté est au centre d'un tétrahèdre formé avec deux atomes de Niobium le long d'un côté du cube et deux autres situés au centre de deux cubes adjacents (fig. 18b). Dans ce site, l'atome d'impureté possède quatre premiers voisins situés à la même distance et la déformation qu'il cause est plus isotrope. VAN LANDUYT, GEVERS et AMELINCKX considèrent que dans ce cas la déformation est induite dans une direction [110] en raison de l'anisotropie qui résulte du fait que seulement un plan (110) sur deux contient des atomes d'impureté. Il y a donc six directions de déformation équivalentes par raisons de symétrie.

Dans les deux cas, plusieurs directions de déformation étant possibles, il va résulter de cette mise en ordre une structure en domaines, chaque domaine étant caractérisé par une direction de la déformation, que les atomes d'impureté provoquent dans le réseau fondamental.

Les frontières entre deux domaines se manifestent par les figures de contraste qui sont observées à l'intérieur du métal (fig. 18) .

Cette mise en ordre est attribuée [32] aux atomes d'oxygène en raison de la grande réactivité de ce gaz avec le Niobium [19-22].

Elle intervient en dessous d'une certaine température critique T_c dont la valeur augmente linéairement avec la concentration en impureté : pour une concentration en poids de 0,3 % d'oxygène dans le Niobium, cette mise en ordre a lieu à la température ambiante [33].

On peut donc supposer qu'entre les irradiations effectuées au dessous de 800°C et au dessus de cette température, la concentration en impuretés absorbées par le Niobium a varié : en particulier, la pression partielle d'oxygène étant supérieure à 2.10^{-4} mm Hg durant les irradiations, et la solubilité de ce gaz dans le Niobium augmentant avec la température [22], une quantité plus importante de ce gaz a dû pénétrerdans le métal lorsque la température d'irradiation s'élevait : la température critique de mise en ordre variant comme la concentration en impureté, pour les températures d'irradiation plus élevées (800°C, 900°C, 1200°C), on devait se trouver en dessous de cette température T_c et la mise en ordre est ainsi intervenue.

Les analyses d'échantillons de Niobium irradiés à différentes températures n'ont pas encore permis de déterminer si, comme le supposent VAN LANDUYT, GEVERS et AMELINCKX [32], l'oxygène était responsable de cette mise en ordre (qu'ils ont observée après chauffage de 2 heures à 1500°C sous un vide de l'ordre de 10^{-5} mm Hg), et si d'autre part les concentrationsen impuretés étaient suffisamment inégales entre 600°C et 800°C, pour expliquer le fait qu'aucune mise en ordre ne soit intervenue à 600°C. Le problème sera sans doute éclairci dans un proche avenir.

IV.3.2.- L'absence de gonflement dans le Niobium irradié à $0,39T_F$ $0,43\ T_F$ et $0,53\ T_F$

Le comportement, à l'égard du phénomène de gonflement, du Niobium et du Molybdène, qui ont une température de fusion voisine, n'est pas le même pour des températures d'irradiation supérieures à $0,40\ T_F$: le Molybdène présente en effet un gonflement à haute température [34]. Certains travaux effectués dans ces deux métaux [6-20-21] permettent de penser que cette différence ne peut pas s'expliquer par une plus faible valeur de l'énergie de migration de la lacune dans le Niobium, ce qui pourrait entraîner un décalage du pic de gonflement de ce métal vers les basses températures par rapport à celui du Molybdène : en effet, alors que la lacune semble migrer dès le stade III dans le Molybdène [6], les stades II et III du Niobium sont dus au réarrangement d'atomes d'impuretés [20-21] ; il apparaît donc que la lacune ne migre pas avant le stade IV dans ce métal.

A partir de ces considérations, il est logique d'attribuer les propriétés dissemblables de ces deux métaux, en ce qui concerne le gonflement à haute température, à leur comportement différent vis à vis des impuretés :

- le Molybdène appartient au groupe VI des métaux réfractaires et sa solubilité pour les atomes d'impuretés est faible.

- le Niobium fait partie du groupe V et offre une grande solubilité aux impuretés gazeuses : O_2, N_2, C, H_2.

Nous pensons donc que l'absence de gonflement dans le Niobium à haute température s'explique par la mise en ordre des atomes d'impuretés, que nous avons mise en évidence à la suite de ces irradiations et dont nous avons parlé au paragraphe précédent. Plusieurs explications peuvent être avancées.

IV.3.2.a.- Augmentation du rayon critique de croissance-

Nous avons déjà souligné (page 30) que les impuretés gazeuses présentes dans un métal pouvaient favoriser la formation des cavités en stabilisant les germes.

Si les atomes de gaz n'assument plus cet effet stabilisateur, et s'ordonnent en une surstructure comme nous l'avons constaté, on peut remarquer, à partir de l'équation (8) (page 30), que dans l'expression du rayon critique de croissance, le terme dû au gaz présent dans la cavité disparaissant, la valeur de ce rayon critique va augmenter.

La formation d'une cavité est donc rendue plus difficile si les atomes de gaz, plutôt que de participer à cette formation, s'ordonnent comme c'est le cas à haute température.

Cette hypothèse peut cependant être mise en doute si l'on considère que les impuretés gazeuses d'une nature donnée s'ordonnant dans le métal, il doit subsister suffisamment d'atomes d'autres gaz, qui permettent aux cavités de grossir.

IV.3.2.b. Résistance au gonflement d'alliages contenant des précipités semi-cohérents -

SAINFORT-SYLVESTRE et BOURRET [35] ont observé que certains alliages ne présentent pas de gonflement et attribuent ce fait à la présence de précipités semi-cohérents induits par l'irradiation, dans ces alliages.

Ils expliquent ce phénomène en considérant que ces précipités, dont la maille cristalline varie par rapport à celle de l'alliage, induisent à leurs interfaces avec la matrice de l'alliage un réseau régulier de dislocations qui permet de compenser périodiquement les différences de valeur entre leur maille cristalline et celle de l'alliage.

L'élimination des défauts ponctuels crées par l'irradiation sur ces dislocations d'interface nécessitant une énergie trop élevée, ces dislocations attirent les interstitiels sans les absorber et favorisent donc l'annihilation lacune-interstitiel dans leur voisinage, faisant ainsi sombrer la sursaturation lacunaire nécessaire au gonflement.

On peut supposer qu'un tel mécanisme intervient dans le Niobium irradié à haute température, aux interfaces entre le réseau fondamental et les domaines à l'intérieur desquels le réseau est déformé par la mise en ordre d'impuretés en position interstitielle.

L'avidité que manifeste le Niobium pour absorber des impuretés gazeuses a déjà fait l'objet d'un certain nombre d'études, qui tentaient de préciser l'influence de ces impuretés sur les propriétés physiques du métal. En ce qui concerne le gonflement on voit donc que si l'interprétation que nous donnons se confirme elle ferait du niobium un métal qui résiste au gonflement dans une certaine gamme de température.

CHAPITRE V

LE PROBLEME DE LA NUCLEATION

IV.1.- Influence des impuretés gazeuses sur la formation des défauts d'irradiation-

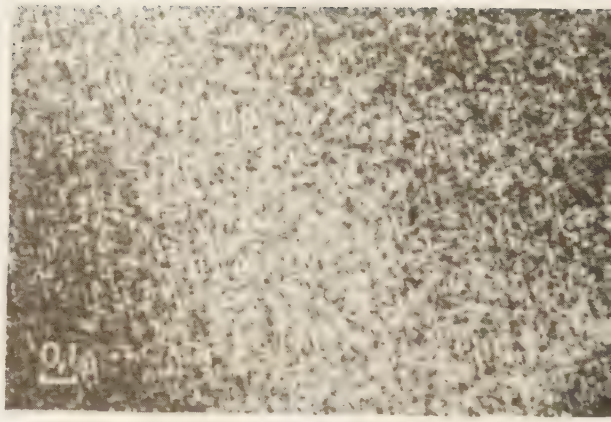
(i) - Si l'on ne connait pas encore les caractéristiques du germe à partir duquel une cavité grossit, il est admis que les atomes d'impuretés gazeuses, en stabilisant la forme tridimensionnelle des amas lacunaires facilitent la nucléation des cavités. Ces impuretés gazeuses peuvent être présentes dans le métal avant son irradiation, ou bien être produites au cours de celle-ci. On peut notamment produire, pendant une irradiation neutronique, de l'hélium par réaction (n, α).

Ce rôle important que semblent assumer les impuretés gazeuses dans un métal irradié n'intervient d'ailleurs pas uniquement dans la formation des cavités ; comme le montrent de récentes expériences réalisées à l'aide d'un microscope électronique à haute tension (1 MV). Dans un tel appareil, les électrons ont suffisamment d'énergie pour déplacer de leur site les atomes du métal observé , et pour créer par conséquent des défauts ponctuels. Il permet donc de réaliser simultanément l'irradiation et l'observation d'un échantillon. Nous avons ainsi irradié, à température ambiante, dans le microscope électronique à haute tension (1MV) de Grenoble, des lames minces de Niobium issues d'échantillons ayant subi deux traitements différents :

- les uns avaient préalablement été recuits à 1800°C sous un vide de 5.10^{-7} Torr.

- Pour les autres, la température du recuit avait été de 2000°C et le vide de 5.10^{-8}Torr.

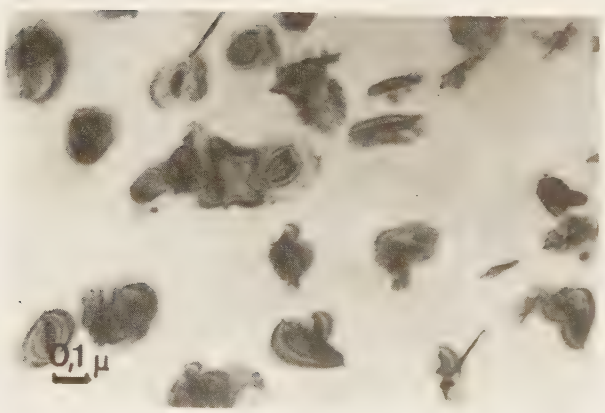
(a)



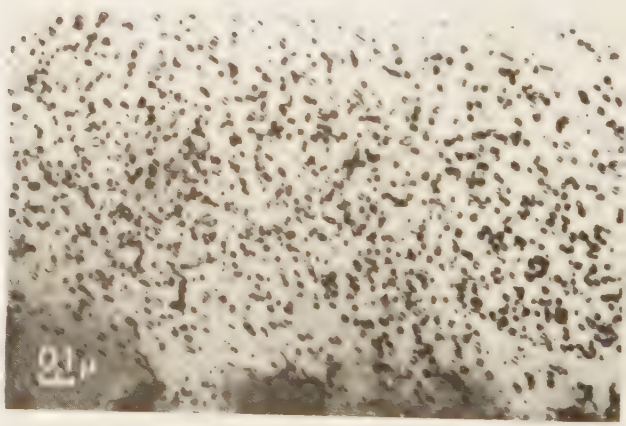
(b)

Nb. recuit à 1800°C sous 5.10^{-7} Torr

(a) avant irradiation
(b) après 10mn. d'irradiation aux électrons



(c)



(d)

Nb recuit à 2000°C sous 5.10^{-8} Torr

(c) avant irradiation
(d) après 10mn. d'irradiation aux électrons

Influence des impuretés gazeuses sur la croissance des défauts d'irradiation dans le Niobium

Fig. 19

Ces échantillons contenaient en gros la même quantité d'impuretés gazeuses : 30 µg/g de O_2 - 15 µg/g de N_2 - 5 à 40 µg/g de C. Cependant, à l'intérieur de ceux qui avaient supporté le second traitement (2000°C - 5.10^{-8} Torr), ces impuretés étaient rassemblées sous la forme de plaquettes de précipités (figure 19). Entre ces précipités, la pureté du métal était donc meilleure que dans le Niobium recuit à 1800°C sous 5.10^{-7} Torr.

Après une irradiation de 10 mm dans le microscope, les phénomènes observés sont différents dans chacun des deux types d'échantillons (figure 19) :

- dans le Niobium qui avait subi le premier type de recuit, une très forte densité de petits défauts d'irradiation est visible : la détermination de leur densité n'est pas réalisable vus leur nombre et leur petite taille.

- après recuit à 2000°C sous 5.10^{-8} Torr, on observe un nombre moins élevé de défauts et l'on note en particulier la présence, à côté de petits défauts, de plus grosses boucles dont le diamètre est d'environ 200 Å. La densité de défauts est, dans cette lame irradiée, de l'ordre de $2.10^{15}/cm^3$. Tous ces défauts sont vraissemblablement des boucles interstitielles, la lacune n'étant pas mobile à température ambiante dans le Niobium. La répartition de ces boucles est par conséquent affectée par la présence des impuretés ; leur nombre augmente et leur taille diminue dans l'échantillon irradié qui est le plus pollué.

(ii) - Pour tenter de préciser ce rôle des gaz sur la formation des cavités, plusieurs expériences ont été conduites, consistant à ajouter des impuretés gazeuses dans un métal avant de l'irradier aux neutrons, aux ions ou aux électrons dans un microscope à haute tension [24]. En général dans le métal ainsi dopé, on observe une augmentation du nombre de cavités et une diminution de leur taille, ce qui se traduit par une modification peu importante du gonflement. Cependant, à la suite de plusieurs travaux utilisant comme moyen d'irradiation un microscope électronique à haute tension [25-26-27], il apparaît qu'au cours de ce type d'irradiation, les atomes de gaz, ou leur amas, favoriseraient le gonflement en épinglant les dislocations, dont le rôle primordial a été discuté précédemment, leur interdisant ainsi d'aller se guérir à la surface.

Dans la plupart de ces expériences, le chargement en gaz a été réalisé à l'aide d'un bombardement préalable à l'irradiation. Cette technique de chargement présente des inconvénients car en bombardant de la sorte, l'on crée des défauts et l'on ne connait pas exactement les caractéristiques des complexes ; atomes de gaz, amas de défauts ponctuels, qui résultent d'un tel procédé de chargement en gaz. Nous reviendrons au paragraphe V3 sur des expériences de trempe d'échantillons de Nickel qui ont été chargés en gaz par cette méthode.

Un autre procédé de chargement d'échantillons en hélium au moyen du tritium a été mis en oeuvre à Bruyères le Châtel [36], mais il n'a pas permis de retenir des concentrations de gaz significatives. Nous avons d'ailleurs vérifié que des échantillons de Nickel traités par cette méthode puis trempés, ne présentaient pas de différence par rapport à des échantillons trempés qui ne l'avaient pas subie.

Une autre approche du problème peut consister à faire diffuser du gaz dans un métal en chauffant ce métal sous atmosphère gazeuse. On peut montrer par le calcul, à partir des données de COMBETTE [38], qu'en chauffant du Nickel à 400°C sous une atmosphère de 1 Torr d'hydrogène on introduit une concentration égale à 6 atomes par million de ce gaz. En maintenant la température et la pression au cours de l'irradiation, on conserve une concentration de gaz constante, et l'on peut étudier son influence. Pour des raisons techniques, nous n'avons pu réaliser cette expérience avec le microscope à haute tension de Grenoble.

Aussi, nous avons profité au C.E.N. Grenoble de la mise au point [28] de techniques de trempe avancées, pour tenter de préciser l'influence des gaz sur la germination des cavités dans les métaux. Des échantillons, de Nickel ont été ainsi étudiés et l'une des techniques employées fut la trempe sous haute pression hydrostatique de gaz (He-A) :

- le gaz est introduit au cours d'un chauffage sous haute pression gazeuse
- un refroidissement brutal, ou trempe, permet à la suite du chauffage de retenir une forte concentration de lacunes en sursaturation
- on étudie alors l'élimination de cette sursaturation lacunaire.

Nickel trempé depuis 1000°C sous 0,5 Kbar d'He

Nickel trempé depuis 1000°C sous 1,5 Kbar d'He

Nickel trempé depuis 300°C sous 6 Kbar d'He

Influence de la température de trempe et de la pression gazeuse sur l'écrouissage du Nickel trempé sous haute pression.

Fig. 10

V.2. - Trempes sous haute pression de gaz

Des rubans de Nickel de 30 μ d'épaisseur, 1mm de largeur et 15 mm de longueur, recuits 24 h à 820°C, ont été portés à des températures variant entre 300°C et 1200°C par passage d'un courant continu, sous des pressions hydrostatiques variant de 0,5 à 6 K bars d'hélium ou d'argon, puis refroidis brutalement par coupure du courant. La vitesse initiale de refroidissement était de l'ordre de 70000°C/s.

Nous avons ensuite étudié ces échantillons au microscope électronique à 100 ou 200 kV, soit directement après un tel traitement, soit après un recuit supplémentaire de 30 mm à des températures de 250°C à 350°C c'est-à-dire, pour le nickel 0,30 T_F à 0,35 T_F. Ils étaient amincis dans un bain électrolytique composé de 91 % d'éther monobutylique et de 9 % d'acide perchlorique à -10°C.

Aucune cavité ne fut observée dans tous ces échantillons. L'analyse au spectromètre de masse avait pourtant révélé la présence d'une concentration notable de gaz après trempe :

température de trempe	pression	teneur en hélium en atomes par million (apm)
1000°C	0,5 Kbar	1,5
1000°C	5 Kbars	2,3
400°C	6 Kbars	0,8

Nous avons par contre remarqué un fort écrouissage des échantillons, la densité de dislocations étant plus importante lorsque la température de trempe et la pression du gaz augmentaient [fig.20]. Dans les échantillons trempés sous 6 Kb, certaines plages semblaient même avoir subi une transformation, puisque leur diagramme de diffraction était identique à celui d'un diagramme de poudre et l'écrouissage était si fort que ces échantillons n'étaient pas observables. Nous résumons ci-dessous les principaux résultats que nous avons notés en fonction des différents paramètres :

température de trempe : 1000°C-pression	0,5 Kbar	observable
	1,5 Kbar	quelques plages observables
	3 Kbars	non observable

pression : 6 Kbars-température de trempe	20°C	observable-faible écrouissage
	400°C	non observable
	800°C	non observable

Un échantillon laissé libre au cours du traitement à 20°C sous 6 Kbars apparaît moins écroui qu'un autre échantillon fixé, traité dans des conditions identiques. En plus de la pression hydrostatique, des contraintes mécaniques semblent donc jouer un rôle dans les effets observés.

température de trempe : 400°C-pression	4 Kbars - trempé-non observable
	6 Kbars - refroidi lentement-observable

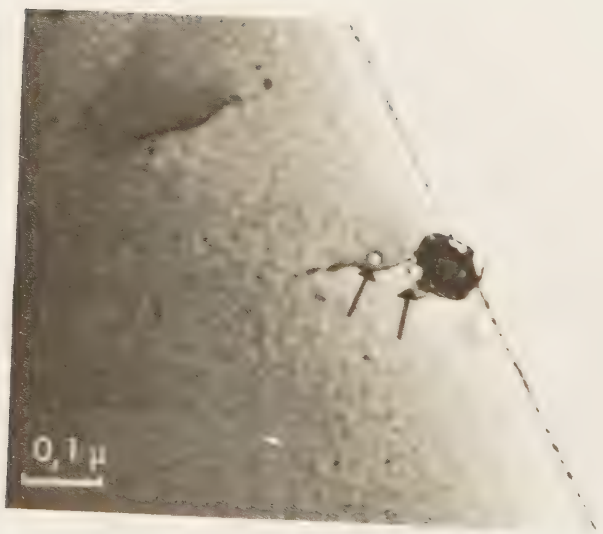
Si l'écrouissage apparaît lié à la température de trempe et à la pression du gaz, il dépend donc également de la vitesse de refroidissement.

Nous pensons que cet effet peut être attribué au gaz diffusé dans le métal au cours du chauffage sous haute pression, qui ressortirait brusquement lorsque la température est abaissée et la pression relâchée, provoquant ainsi des variations brutales de la maille cristalline donc un écrouissage du réseau et même un éclatement de la matrice de Nickel lorsque la pression et la température de trempe sont élevées. Deux considérations permettent d'avancer ces arguments :

- le résultat des analyses montre que la concentration en Hélium est de 1,5 apm dans le Nickel trempé depuis 1000°C sous 0,5 Kbar et qu'elle n'est que de 2,3 apm dans l'échantillon trempé depuis 1000°C sous 5 Kbars, alors que pour des pressions de cet ordre, on attend une relation approximativement linéaire entre la concentration et la pression. On peut donc penser que dans le second cas, l'hélium ressort du métal au cours de la trempe.

- d'autre part, des échantillons trempés depuis 800°C sous 6Kbars d'Argon apparaissent moins écrouis que ceux traités dans des conditions identiques, mais sous pression d'Hélium ; l'importance de l'écrouissage semble donc liée à la nature du gaz.

Nickel trempé depuis 1200°C,



Nickel trempé depuis 1300°C,

Cavités dans le Nickel chargé en He au cyclotron, trempé par immersion et recuit 30mn à 400°C.

Fig. 21

Cet effet est suffisamment important pour interdire la formation de boucles ou de cavités, car les dislocations ainsi créées, en balayant des zones importantes du cristal, provoquent une élimination de la sursaturation lacunaire. Ainsi, LOZES [29] estime que le rapport de la densité de dislocations à la vitesse de trempe doit être inférieur à 2500 pour que des amas de lacunes puissent se former dans le Nickel trempé. La densité de dislocations étant supérieure à 10^9 dislocations/cm^2 dans tous les échantillons que nous avons observés, ce rapport était bien plus élevé que cette valeur critique. En outre, en fonction de ces difficultés, nous avons été amenés à n'utiliser que des températures de trempe assez basses, de manière à limiter l'écrouissage des échantillons. Or il semble que des amas de lacunes ne peuvent être observés dans le Nickel trempé que pour des températures de trempes supérieures à 1200°C [29].

Ces raisons sont peut-être suffisantes pour expliquer qu'aucun amas lacunaire n'a pu être décelé dans tous ces échantillons.

V.3. - Trempes par immersion -

Nous avons également étudié des échantillons de Nickel chargés en hélium au moyen du cyclotron de Saclay [37]. La concentration en gaz ainsi implanté était voisine de 10 atomes par million.

Ces échantillons avaient la même géométrie que ceux utilisés pour les trempes sous haute pression. Après chargement en gaz, ils furent chauffés sous atmosphère d'hélium par passage d'un courant continu, puis trempés par immersion dans un bain d'huile. La vitesse de refroidissement était de l'ordre de 40000°C/s.

La température de trempe était de 1200°C ou 1300°C. Après trempe, tous ces échantillons furent recuits 30 mn à 400°C (0,39 T_F).

L'examen au microscope électronique, a révélé la présence de cavités à l'intérieur des lames provenant des échantillons ainsi chargés en gaz (Fig. 21), alors qu'aucune cavité ne fut mise en évidence dans les échantillons trempés dans des conditions identiques mais non chargés en hélium.

Ces cavités sont peu nombreuses ; leur densité est inférieure à 10^{13} par centimètre cube. Elles ont un diamètre moyen voisin de 100 Å dans l'échantillon trempé depuis 1200°C et de 150 Å dans celui trempé depuis 1300°C. Par le calcul, on en déduit que le nombre de lacunes agglomérées sous forme de cavités correspond à une concentration inférieure à 3.10^{-5} lacunes par site. LOZES [29] prévoit que dans des conditions de trempes voisines de celles décrites pour nos expériences, la concentration d'équilibre thermique des lacunes à la température de trempe est proche de 10^{-4} lacune/site, mais qu'en raison des pertes sur les différents puits au cours de la trempe, la concentration de lacunes disponibles à l'agglomération en fin de trempe est de l'ordre de 3.10^{-5}. Dans nos expériences, une forte proportion de la sursaturation lacunaire s'est donc rassemblée sous la forme des cavités que nous avons observées.

Ces cavités sont toujours situées sur, ou au voisinage d'une ligne de dislocation. Ceci semble prouver soit qu'il existe une interaction entre les dislocations et les atomes de gaz introduits avant la trempe et qui servent de germes pour la formation des cavités, ou encore que les dislocations, lorsque la température s'élève au cours du traitement, vont s'épingler sur de petits agglomérats d'atomes de gaz. Un phénomène analogue a été observé dans l'Or [30] et dans le Nickel [31].

L'influence des atomes de gaz, ou de leurs amas, sur la formation des cavités est donc mise en évidence dans ces expériences, puisqu'en général, des échantillons de Nickel non chargés en gaz ne présentent pas de cavités après trempe mais essentiellement des boucles [29].

CONCLUSION

Cette étude entreprise sur le Niobium, mais qui s'insère dans un vaste programme d'irradiation de métaux purs et alliages qui se développe actuellement au sein du Commissariat à l'Energie Atomique, a permis de confirmer que l'influence des différents paramètres d'irradiation (flux instantané dose totale, température) sur la croissance des cavités était bien comprise et pouvait être prévue à partir de modèles qui s'appuient sur la théorie de la cinétique chimique.

Cependant, le Niobium présente un comportement anormal, vis à vis du phénomène de gonflement, par rapport à la majorité des autres métaux : son pic de gonflement est rendu très étroit par le fait qu'il ne gonfle pas pour des températures certes élevées, mais qui, vu le haut point de fusion de ce métal, devraient se situer à l'intérieur de son domaine de gonflement. Nous attribuons ce phénomène à la grande réactivité que manifeste ce métal vis à vis de gaz comme l'oxygène, l'azote et l'hydrogène. En particulier pour les températures considérées, certaines de ces impuretés s'ordonnent, et il en résulte une structure en domaines qui pourrait avoir un rôle analogue aux précipités semi-cohérents, dans certains alliages résistant au gonflement.

Il serait, à ce sujet, intéressant de confirmer cette hypothèse en vérifiant, par des irradiations appropriées, que le pic de gonflement du Niobium n'est pas décalé vers les basses températures.

Si la croissance des cavités est bien comprise, il n'en est pas de même de leur nucléation et de l'influence des impuretés gazeuses sur leur germination.

Il parait difficile actuellement de pouvoir résoudre ce problème dans le Niobium, par des irradiations à chaud au microscope électronique à haute tension, le vide régnant dans cet appareil ne permettant pas d'éviter une pollution de ce métal.

Nous avons abordé ce problème dans le Nickel mais nous n'avons obtenu que des résultats partiels en raison de la densité de dislocations élevée qui résultait des différents traitements qu'avaient subis les échantillons.

Toutefois, grâce à la mise en service, à Grenoble, du microscope électronique à haute tension, ce délicat problème de l'influence des gaz sur la germination des cavités dans les métaux irradiés devrait pouvoir être abordé à partir d'expériences originales, consistant à irradier directement sous atmosphère gazeuse ; une étape importante vers une meilleure connaissance du phénomène de gonflement pourrait ainsi être franchie.

REFERENCES

1 - C. CAWTHORNE, E.J. FULTON, Nature ,1967, vol.216, p 576

2 - J.O. STIEGLER, K. FARRELL, C.K.H. DUBOSE, R.T. KING, Proceedings of the Symposium on Radiation Damage in Reactor Materials. Vienna, 1969, Vol.II, p215

3 - B. MASTEL, J.L. BRIMHALL, Journal of Nuclear Materials, 1968, vol.28, p115

4 - F.W. WIFFEN, J.O. STIEGLER, Transactions of the American Nuclear Society, 1969, vol.12, n°1, p 119

5 - R.C. RAU, R.L. LADD, J. MOTEFF, Journal of Nuclear Materials, 1969, vol.33, p 324

6 - P. BICHON, Thèse 3° Cycle, Grenoble 1971

7 - J. FRIEDEL, Dislocations, Pergamon Press 1964

8 - A.J.E. FOREMAN, G.W. GREENWOOD, D.E. RIMMER, Journal of Nuclear Materials, 1959, vol.4, p 305

9 - F.S. HAM, Journal of Applied Physics 1959, vol.30, p. 915

10 - S.D. HARKNESS, CHE YU LI, Metallurgical Transactions 1971, vol.2, p 1457

11 - R. BULLOUGH, R.C. PERRIN, Voids Formed by Irradiation of Reactor Materials, Reading (G.B.) March 1971

12 - M. GOMOLINSKI, G. BREBEC, Journal of Nuclear Materials, 1972, vol.43, p59

13 - A.C. DAMASK, G.J. DIENES, Points Defects in Metals, Gordon and Breach, 1963

14 - T.T. CLAUDSON et al. Proceedings of the Symposium on Radiation Damage in Reactor Materials, Vienna 1969, vol.II, p176

15 - P.B. HIRSCH, Electron Microscopy of Thin Crystals London, Butterworths 1965

16 - J. VAN LANDUYT, R. GEVERS, S. AMELINCKX, Physica Status Solidi 1965, vol.10 p.319

17 - M.R. RUHLE, Transmission Electron Microscopy of Radiation, Induced Defects Conf. on Radiation, Induced Voids in Metals, Albany, New York, June 1971

18 - Y. ADDA, J. PHILIBERT, La diffusion dans les Solides, Bibliothèques des Sciences et Techniques Nucléaires, 1966

19 - N. TERAO, Japanese Journal of Applied Physics, march 1963, vol.2, n°3,p156

20 - R. PICHON, F. VANONI, P. BICHON, G. de KEATING HART, P. MOSER, Revue de Physique Appliquée, Juin 1970, tome 5, p.427

21 - J.M. WILLIAMS, W.E. BRUNDAGE, J.T. STANLEY, Metal Science Journal 1968, vol.2 p.100

22 - E. GEBHARDT, R. ROTHENBACHER, Zeit. Metallkunde, 1963, vol.54, p.623

23 - J.D. ELEN, G. HAMBURG, A. MASTENBROEK, Journal of Nuclear Materials 1971, vol.39 p. 194

24 - D.I.R. NORRIS, Radiation Effects 1972, vol.15, p.1

25 - M.J. MAKIN, Philosophical Magazine, 1972, n°25, p.761

REFERENCES (suite)

26 - K. URBAN, Physica Status Solidi (a), 1970, vol.3, K167

27 - D.E.R. NORRIS, Nature, 1970, 227, p.830

28 - M. CHARLES, J. DELAPLACE, Scripta Metallurgica, 1972

29 - G. LOZES, S. SCHERRER, B. DEVIOT, Revue de Physique Appliquée, Septembre 1971, tome 6, p.285

30 - J. HILLAIRET, V. LEVY, M. CHARLES, Physica Status Solidi, à paraître 1973

31 - A.A. DYKES, Journal of Nuclear Materials, 1972, vol.42, p.223

32 - J. VAN LANDUYT, R. GEVERS, S. AMELINCKX, Physica Status Solidi, 1966 vol.13 p.467

33 - R.W. POWERS, M.V. DOYLE, Journal of Applied Physics, 1959, vol.30, n°4, p.514

34 - J. PELISSIER, L. LOMBARD, Compte Rendu n°49/72, D.M.E.C.N.-DM/G-SPCC-CEN/ GRENOBLE.

35 - G. SAINFORT, G. SILVESTRE, A. BOURRET, Compte Rendu n°58/72, D.M.E.C.N.-DM/G-S.E.R.-C.E.N. GRENOBLE

36 - M. TRUFFIER, ROUDIER, Note technique C.E.A. D.M.E.C.N.-D.Tech/SRMA/71-462 Septembre 1971

37 - P. BLANCHARD, P. JARY, J. DELAPLACE, Rapport Interne C.E.A.-D.M.E.C.N.-D.Tech/ S.R.M.A./25, Fiche programme n°3442, Septembre 1972

38 - P. COMBETTE, Thèse, Orsay 1971.